



TITLE:

内部熱交換を最適化した新型内部  
熱交換型蒸留塔(HIDiC)の開発(  
Dissertation\_全文)

AUTHOR(S):

若林, 敏祐

---

CITATION:

若林, 敏祐. 内部熱交換を最適化した新型内部熱交換型蒸留塔(HIDiC)の  
開発. 京都大学, 2013, 博士(工学)

ISSUE DATE:

2013-11-25

URL:

<https://doi.org/10.14989/doctor.k17957>

RIGHT:

内部熱交換を最適化した  
新型内部熱交換型蒸留塔(HIDiC)の開発

2013 年

若林 敏祐

## 目次

### 第 1 章 序論

1-1	内部熱交換型蒸留塔の開発意義	1
1-2	既往研究	2
1-3	本論文の目的と概要	5
1-4	参考文献	7

### 第 2 章 内部熱交型蒸留塔(HIDiC)における

#### サイド熱交換配置が省エネルギー性能に与える影響

2-1	緒言	10
2-2	シミュレーション条件	10
2-3	CGCC 解析の問題点	11
2-4	サイド熱交換段の組合せに関する検討手法	14
2-4-1	単一段間熱交換による検討手法	14
2-4-2	複数段間熱交換による検討手法	16
2-5	サイド熱交換配置の最適化	17
2-5-1	単一段間熱交換による検討結果	17
2-5-2	複数段間熱交換による検討結果	20
2-5-3	サイド熱交換配置の最適化	23
2-6	結言	24
2-7	記号	24
2-8	参考文献	25

### 第 3 章 $H$ - $xy$ 線図と $T$ - $xy$ 線図を用いた

#### 内部熱交型蒸留塔(HIDiC)の設計手法

3-1	緒言	27
3-2	$H$ - $xy$ 線図と $T$ - $xy$ 線図を用いた HIDiC の設計手法	28
3-2-1	Ponchon-Savarit 線図	28
3-2-2	改良 Ponchon-Savarit 線図と $T$ - $xy$ 線図を用いた設計方法論の概要	32

3-2-3	改良 Ponchon-Savarit 線図と $T$ - $xy$ 線図を用いた設計方法論の詳細	33
3-2-3-1	回収部の理想的なサイド熱交換量条件	33
3-2-3-2	回収部におけるサイド熱交換の与え方の決定	35
3-2-3-3	濃縮部の理想的なサイド熱交換量条件	38
3-2-3-4	濃縮部におけるサイド熱交換の与え方の決定	40
3-2-3-5	サイド熱交換器の伝熱面積	43
3-3	設計手法の検証	43
3-3-1	提案する HIDiC 設計手法の有効性	45
3-3-2	提案する HIDiC 設計手法の有用性	47
3-4	多成分系への拡張	52
3-5	結言	57
3-6	記号	58
3-7	参考文献	59
第 4 章	可逆蒸留線と操作軌跡線を用いた 内部熱交型蒸留塔 (HIDiC) の適性判断	
4-1	緒言	60
4-2	検討対象プロセス条件	61
4-3	検討結果	63
4-3-1	原料組成の影響	63
4-3-2	製品純度の影響	72
4-4	結言	76
4-5	記号	77
4-6	参考文献	78
第 5 章	新型内部熱交換型蒸留塔の提案	
5-1	離散的で限られた段間で熱交換を行う 内部熱交換型蒸留塔構造の提案	79
5-2	提案する新内部熱交換型蒸留塔 システムのケーススタディー	81

5-3 記号	90
5-4 参考文献	91
第 6 章 総論	
6-1 総括	92
6-2 今後の研究課題	93
本論文に関する筆者の研究成果	95
謝辞	97

# 第1章 序論

## 1-1 内部熱交換型蒸留塔の開発意義

世界は2度の石油危機を経て、それを乗り越えるため省エネルギー化を進めてきた。近年では京都議定書(COP3)によるCO<sub>2</sub>削減が大きく取り上げられ、異なる観点で省エネルギー化が求められている。我が国のエネルギー消費量を統計から見ると<sup>1)</sup>、2009年度の日本全体での消費エネルギー量は14,392 PJであり、このうち産業部門での消費は42.8%に相当する6,154 PJである。更に産業部門のなかで製造業は92.9%を消費しており(消費エネルギー量5,718 PJ)、蒸留が多く用いられている化学産業で、その38.4%(消費エネルギー量2,197 PJ)を消費している。化学産業における蒸留による分離操作の消費は、化学産業の全消費エネルギーの40%に及ぶとされている。すなわち、日本全体の総エネルギー消費量の実に6%ものエネルギーを化学産業における蒸留操作で消費していることになる。また、米国DOE/EEREの調査によれば、全米製造業のエネルギー消費量に対して石油精製および化学工業が占める割合は34%であり、そのなかで蒸留操作が消費するエネルギーは57%であると報告されている。すなわち、全米製造業消費エネルギーにおいて、蒸留操作が占めるエネルギー消費の割合は約19%である<sup>2)</sup>。全米の全消費エネルギーに対する製造業消費エネルギーの割合が明記されていないが、我が国の42.8%と同等と仮定すれば、蒸留操作は全米消費エネルギーの約8%を消費していることになり、我が国の調査結果と類似している。世界の先進国での蒸留の位置づけの重要性が確認できよう。

蒸留操作は、比較的理論の確立された技術とされ、装置の多段化が容易に可能であることや、一般的に用いられている装置がスケールメリットを享受できることから、石油精製・石油化学、化学分野では最も広く用いられている分離操作である。一方で、エネルギー多消費型操作であることも広く認識されている。このため、これまでに多くの研究者が蒸留に関する様々な省エネルギー技術を開発・提案している。例えば、塔頂ガス再圧縮型ヒートポンプ(Vapor Re-compression Heat Pump System, 以下、VRC)、多重効用システム、垂直分割塔(Petlyuk塔)などである。これらの技術は、流動接触分解装置内のプロピレン精留塔へのVRC、芳香族コンプレックスのキシレン塔と複数装置内の複数の蒸留塔間で行う多重効用システムや、1,3-ブタジエン蒸留における垂直分割塔など経済性の観点から市場に受け入れられる部分では実際に用いられている。しかし、VRCでは塔頂と塔底の温度差が圧縮機動力の大きさに大きな影響を及ぼすため、この温度差が約20 K以下の蒸留塔に適用範囲が限定される。多重効用システムでは、自塔のコンデンサーを他塔のリボイラーの熱源として利用するため、対象プロセス系内の蒸留塔群でコンデンサーとリボイラーの操作温度の差を適

切に確保できる組合せが存在する場合に適用が限定される。あるいは、熱を与える側の塔では操作圧力を高くする場合もあるが、その際に相対揮発度の低下によって、熱を与える塔でリボイラー負荷が大きくなることや、塔底温度が上昇することでリボイラー用役がより高価になる懸念があり適用が限定される。垂直分割塔では、原料を3つの留分に分離する際に、ダイレクトシーケンスやインダイレクトシーケンスを適用すると、それぞれコンデンサーとリボイラーを有する従来型蒸留塔が2塔必要になるものを、1つずつのコンデンサーとリボイラーを有する1塔の蒸留塔で分離する。この際、ダイレクトシーケンスやインダイレクトシーケンスにおける2つの蒸留塔のコンデンサーとリボイラーで、それぞれ用役のレベルが揃っていないと、高価な方の用役を用いなければならぬことや、両塔の操作圧力が異なると加圧系ではより高い操作圧力に、減圧系ではより低い操作圧力に設定する必要があり、適用できる系が限定される。このように従来の省エネルギー蒸留システムを適用できる範囲は限定的であり、産業界では更なる省エネルギーに対する要求は旺盛である。米国を中心としたシェールガス革命による新起原のエネルギー源が商業的にも利用可能になりつつあるが、依然として原油価格は高止まりしており省エネルギーへの要求が下がることはない。

このように既存の省エネルギー技術の利用が限界に達しつつある蒸留に対して、省エネルギーの究極的なたちである可逆蒸留操作（エクセルギー損失が最小となる蒸留操作）を再現することをコンセプトとした内部熱交換型蒸留塔(Heat Integrated Distillation Column, 以下 HIDiC と呼ぶ)に注目が集まっている。

## 1-2 既往研究

HIDiC に関する研究は、1977 年と 1980 年にアメリカ合衆国で特許が出願された頃から活発化した<sup>3)4)</sup>。1977 年に Mah ら<sup>5)</sup>は、理想塔を仮定したモデルによるシミュレーションを行い HIDiC の概念を示し、このシステムを Secondary Reflux and Vaporization(以下、SRV 蒸留法)と命名した。国内においては、京都大学工学部化学工学教室 装置制御工学講座で研究が開始された。1988 年、1989 年には、化学技術研究所において、京都大学、(株)神戸製鋼所、関西大学との共同研究が実施され、基礎研究が行なわれた<sup>6)</sup>。

HIDiC の概念設計に関する研究では、高松ら<sup>7)8)</sup>によって省エネルギー性に関する基本特性が研究され、HIDiC の優れた省エネルギー性能が明らかにされた。特にリボイラー及びコンデンサーの熱負荷がゼロとなる状態を理想的 HIDiC と呼び、理想的 HIDiC を対象にエクセルギー解析を通して、従来型蒸留塔に対してエクセルギー損失が低減され、省エネルギーが得られることが示された<sup>9)10)</sup>。更に、理想的 HIDiC の設計手法が McCabe Thiele 線図を用いて示された<sup>11)</sup>。ただし、これらの研究

では濃縮部と回収部を並列に設置し、これらの段数を同数としたうえで隣り合う段間で熱交換を行うことを想定しており、またそれぞれの熱交換量を一定と仮定している。実際の蒸留塔では濃縮部と回収部の理論段数が異なることが一般的であり、また各段で可逆状態（ある段に流入する液と、その段から流出する気体の組成が等しいとみなせ、気液混合によるエクセルギー損失が無視できる状態）からの乖離が一定ではないことから、サイド熱交換を行う各熱交換器（本論文ではコンデンサー一段およびリボイラー一段と、各段に設置される熱交換器のあいだの熱交換も行えるものとし、以降では内部熱交換と区別しサイド熱交換と呼び、そしてサイド熱交換に用いる熱交換器をサイド熱交換器と呼ぶ）の熱負荷には最適な配置が存在し得ることが容易に想像できる。このため、適切な熱交換配置をもつ HIDiC は、先に挙げた理想的 HIDiC より高い省エネルギー性を得られる可能性がある。なお本論文では、サイド熱交換の配置とは、サイド熱交換を行う段（組成）、その熱交換量、および濃縮部と回収部で熱交換を行う段の組合せを意味するものとする。

Gadalla ら<sup>12)</sup>は、濃縮部と回収部の段数が異なる実際の蒸留塔に対して、段数が少ないセクションの全段と、段数が多いセクションの一部の段間で熱交換を行う partial HIDiC について研究を行った。特に、内部熱交換を行う段の組合せが省エネルギー性に与える影響に注目し、熱交換器ネットワークの熱統合に利用されるピンチテクノロジーを蒸留塔に適用することで、段の組合せが省エネルギー性に与える影響を考察した。この手法では、段数を一定とした蒸留塔を対象に、対象濃縮部・回収部をそれぞれ内部熱交換する前のエンタルピー量と温度の関係で示した Composite Curve 的な図を参照して段間のマッチングを決定している。しかし、有限の段数の蒸留塔では、従来型蒸留塔を基に作成した Composite Curve をもとにマッチングを決定しても、ひとつのサイド熱交換器を設置することにより塔内の温度分布が変化してしまい、複数のサイド熱交換器を設置する際には正確な情報は得られない。更に、Grand Composite Curve を活用した手法も提案されている<sup>12)</sup>。そこでは一度何らかの条件で内部熱交換を行った HIDiC を対象に Grand Composite Curve を描き、その情報を基に更なる省エネルギー性の改善を求め、内部熱交換段の組合せを変更することを提案している。しかし、その位置の決め方と熱交換量の決定に関する理論的な根拠は明確に述べられておらず、研究の余地を多く残している。Olujic ら<sup>13)</sup>は Gadalla の研究を更に進化させ、異なる形式の partial HIDiC の省エネルギー性を検討した。

一方で、HIDiC は diabatic column にヒートポンプ理論を組み合わせたシステムと考えることができる。Diabatic column は、多段蒸留で複数の温度レベルで熱を取り除くか供給することで、塔頂に設置されたコンデンサー、あるいは塔底に設置されたリボイラーの負荷を低減させるシステムである。Rivero<sup>14)</sup>は、段数一定の diabatic column に対してどのようにサイドコンデンサー負荷、あるいはサイドリボイラー負荷を与えれば、コンデンサー、あるいはリボイラー負荷をもっとも低減させる



ことができるかを検討した。この研究では、従来型蒸留における各段の可逆蒸留操作からの乖離、すなわちエクセルギー損失の大きさに基づいてそれぞれの段に与える熱負荷を与えるのではなく、ヒューリスティックな手法で最適化を行い決定している。その結果、それぞれの段に与える熱負荷の大きさは、可逆蒸留操作からの乖離度合とは無関係に与えられ、得られるエクセルギー損失がそれぞれの段でほぼ均一となるかたちで与えられることを示した。

以上の研究とは異なる視点で、Ho ら<sup>15)</sup>は Ponchon-Savarit 法を HIDiC に適用する手法を提案している。この研究では、濃縮部と回収部を並列に設置した際に隣り合う全ての段間で温度差に比例した熱交換量を与えるようにしている。このように内部熱交換量を与えると、Ponchon-Savarit 法の  $H$ - $xy$  線図上では、操作線の起点が全ての段で内部熱交換量相当分だけ変化するような挙動を示す。しかしながら、提案された手法は設計手法というより塔内挙動を把握するための方法であり、この方法からは最適な熱交換の段の組合せや、各々の熱負荷の与え方については何ら指針を得ることができない。

HIDiC の概念設計に関する研究では、蒸留理論に基づく検討のみならず、数理最適化を用いた検討で最適な内部熱交換の配置について検討した研究もおこなわれている。主に二つのアプローチで研究が報告されている。すなわち、混合整数線形計画法と混合整数非線形計画法を用いた最適化である。前者では、中尾ら<sup>16)</sup>が HIDiC の定式化やそのケーススタディーについて報告している。この研究では、HIDiC における濃縮部と回収部の圧力比を変数とし、理論段数を無限段と仮定し、スーパーストラクチャーを構築して最適化を行った。更に、Alcantara ら<sup>17)</sup>は、中尾らの研究を更に進化させ、理論段を無限段としていた仮定をなくし有限段として最適化を行った。その際、内部熱交換の組合せを物理的な同レベル位置の段間での熱交換器に限定せず、組合せを考慮できるようスーパーストラクチャーを構築しているが、離散的に内部熱交換を行う場合に対応できず、課題を残している。一方、後者では Harwardt と Marquardt は<sup>18)</sup>ケーススタディーによる検討を報告しているが、バイナリ変数の増加によるモデルの複雑化と、これに伴う計算時間の増大を避けるため、熱交換段の組合せを濃縮部と回収部を並列設置した際の隣り合う段間のみに限定していることが課題として残されている。

HIDiC は一種のヒートポンプであると考えられるが、同様にヒートポンプの原理を利用している VRC の適用が、省エネルギー性の観点から制限されることは上述の通りである。このため HIDiC をどのような系に対して適用しても、効果的に省エネルギーを達成できるわけではない。HIDiC 適用に関する適性については、Jansens ら<sup>19)</sup>がベンゼン-トルエン、エチルベンゼン-スチレンモノマー、プロパン-プロピレンの各二成分系を対象としたケーススタディーを通して、相対揮発度をパラメータとして適性を議論しており、相対揮発度が小さい方が HIDiC の適性が高いことを示した。

しかし、同成分の分離でも、原料組成、原料中の液比率、製品純度が異なれば、その適性は影響を受けることが推測されるが、これらについては検討されていない。相対揮発度に注目した適用の適性判断の他に、井内ら<sup>20)</sup>は塔内の温度とエンタルピーに注目し、Column Grand Composite Curve（以下、CGCC と呼ぶ）を用いた定性的な適性判断手法を提案した。なお CGCC 解析は、可逆蒸留操作における気相エンタルピーと液相エンタルピーの差に対する、検討対象の実際の蒸留操作における気相と液相のエンタルピー差の乖離の大きさを温度に対して示したものである。

HIDiC の基本特性研究、概念設計手法や適用に関する適性研究とあわせて、装置設計に関しても研究開発が進められてきた。Lueprasitsakul ら<sup>21)</sup>は、濃縮部と回収部が並列に設置されることを想定し、同心円二重管形状の装置をもとに、数値的なモデリングと実験を通してその性能を評価した。二重管の内管壁を濡れ壁塔的に取扱い、数値解析モデルによる伝熱性能による推算が実験結果と良好に一致することを示した。この研究をもとに同心円二重管形状の装置開発が進められ、セミコンマール規模のパイロット装置に使用され、高い省エネルギー性能を示すことに成功している<sup>22)</sup>。この装置では、二重管の内管内側と、内管と外管の間の空間に規則充填物を設置し、それぞれが濃縮部・回収部として機能し蒸留を行いながら内管壁面を伝熱面積として利用している。Bruinsma ら<sup>23)</sup>は同心円状であるが異なるアプローチで装置を開発した。この研究でも濃縮部と回収部が並列に設置され、これを同心円状の構造で装置化していることは同じだが、ヒートパネルと呼ばれるパネル状の熱交換媒体を設置することで内部熱交換が行われる。

### 1-3 本論文の目的と概要

これまで最も研究開発が進んでいる規則充填物を用いる二重管構造の HIDiC では、我が国でパイロットプラントによる実証運転が行なわれ<sup>22)</sup>、50%を超す省エネルギー性能を得たものの、その後市場から受け入れられず商業化を果たせないでいる。その原因は以下のように考えられる。

- (i) 二重管構造あるいは同心円状構造では、製品をサイドカットして取り出すことなどができず、適用可能なプロセススキームに制限がある
- (ii) メンテナンスが困難である
- (iii) 特殊構造となり機器コストが高い

これらの問題を解決するためには HIDiC の概念に立ち返り、異なるアプローチで開発を行う必要があると考えた。

HIDiC は、もともと可逆蒸留操作と類似した塔内挙動を目指すものであるが、SRV 蒸留法として Mah らがその基本概念を提案して以来、濃縮部と回収部を並列に設置して隣り合う段間で内部熱交

換を行うことを前提としている。ここであらためて可逆蒸留操作の概念を考えると、そこには二つの大きな仮定がある。一つは無限の理論段数を想定していることと、もう一つは全ての段に設置されるサイドコンデンサーとサイドドリボイラーにおける熱負荷を無限小としていることである。しかし、HIDiC の理論段数は有限であるから、各段に与える熱負荷は無限小ではなく有限値となる。各段によって可逆蒸留操作からの乖離、すなわち平衡状態からの乖離の程度が異なるから、与えるサイド熱交換器の負荷には最適値が存在すると考えられる。また、この与えるべきサイド熱交換器の負荷は、濃縮部と回収部を並列設置した際に隣り合う段間の温度差でほぼ決定されるような熱負荷とは、必ずしも一致しないことは容易に推測できる。

そこで本研究では、可逆蒸留操作の塔内挙動を、よりシンプルな構造で、これまでとは異なるアプローチで再現する HIDiC システムを開発することを目的とする。すなわち、サイド熱交換をこれまで暗黙的に前提としてきた、濃縮部と回収部を並列設置し隣り合う段間で行うことに限定せず、省エネルギー性の観点からより好ましい配置でサイド熱交換を行うことを検討する。更に、このような新しいサイド熱交換配置を有する HIDiC の設計方法を開発することを目的とする。

サイド熱交換の最適な配置については、問題を混合整数非線形計画問題(MINLP)として定式化すれば、原理的には解を得ることができる。しかしながら、これまでの MINLP を用いたサイド熱交換の最適化に関する研究では、上述のとおりバイナリ変数の増加によるモデルの複雑化と、これに伴う計算時間の増大を避けるため、サイド熱交換段の組合せを(従来まで開発されてきた HIDiC 装置のように)濃縮部と回収部を並列設置した際の隣り合う段間のみに限定している<sup>18)</sup>。HIDiC の適用は、通常概念設計フェーズで検討されるが、この段階で様々な設計条件に対して段レベルでの組合せ最適化することは、甚大な時間を要してしまうため適切な検討アプローチではない。本研究では、概念設計段階での様々な検討条件において、目標とする省エネルギー性の実現性を確認できるように、直接的でインタラクティブに設計を行なえるような図解法を開発した。

2章では、蒸留塔の省エネルギー検討で頻繁に活用されている CGCC 解析は、有限段で段数一定のもとで、HIDiC のようにサイド熱交換器による省エネルギー化を図るシステムを検討することに用いるには問題があり、このような場合には他の解析手法が必要であることを指摘した。更に、サイド熱交換を行う段の組合せに注目し、SRV 蒸留法が提案されて以来前提とされている、濃縮部と回収部を並列設置した際に隣り合う段間で熱交換をする方式とは全く異なる段の組合せで、より優れた省エネルギー性を得られることを示した。更に、このようなサイド熱交換は、これまで研究されてきているように全段にわたり熱交換を行うのではなく、限られた適切な段間のみでサイド熱交換を行うことで得られることを示した。

3章では2章での結果を受け、限られた適切な段間で行うサイド熱交換配置の与え方について、Ponchon-Savarit 法を大幅に改良した線図を考案し、これを用いて設計する手法を提案した。この線図は、通常の Ponchon-Savarit 法の  $H$ - $xy$  線図に、可逆蒸留操作における塔内の熱的な挙動を表す可逆蒸留線(reversible distillation curve)や、実際の塔内の熱的な挙動を表す操作軌跡線図(operating locus)を付加し、更に  $T$ - $xy$  線図を統合して表したものである。Ponchon-Savarit 法の  $H$ - $xy$  線図にこのような大幅な改良を施すことで、HIDiC を設計する際に、どの組成(段)で熱負荷を与えるべきか、どれだけの大きさの熱負荷を与えるべきか、濃縮部と回収部のどの段間で熱交換を行うべきかについて、設計指針を得られることを示した。また、提案する線図を用いた設計手法により得られる HIDiC の省エネルギー性が、数理的に最適化した結果と良好に一致することを確認した。更に、提案する設計手法が2成分系のみならず、多成分系の蒸留にも適用できることを示した。

4章では、3章で開発した設計手法と線図を用いて、HIDiC の適用が望ましい系の特徴について検討した。HIDiC はヒートポンプの一種であることから、キー成分の相対揮発度や、圧縮機で処理されるガスの圧縮比に対する飽和温度の変化が、その適性に影響を与えることは、既往研究で明らかにされてきた。しかし、同じ分離系でも原料組成や製品純度が異なれば、系の特徴は異なるはずであり、このような点を考慮して適用が望ましいか判断する指針が必要である。検討の結果、同じ物質を蒸留する場合でも、原料組成、製品純度によって適性が異なることを示した。

5章では、4章までの研究成果により得られた新しいサイド熱交換配置を有する HIDiC を実現するための装置構造について提案した。この構造は、先に指摘したこれまで開発されてきた HIDiC の問題点を解決できるものとなっている。商業規模の処理量を想定したケーススタディーを通して、提案する新型装置が、限られた最適な段間でサイド熱交換を有する HIDiC を再現できることを示した。更に、従来型蒸留操作に対する運転費の削減分と、従来型蒸留装置との総投資コスト差を算出し、新構造 HIDiC の経済性評価を行った。その結果、新型装置は経済的にも工業界に受け入れられる可能性が高いことを示した。

その上で、6章にて本研究の成果について総括し、今後の研究課題について提起した。

#### 1-4 参考文献

- 1) 資源エネルギー庁, エネルギー白書 2012
- 2) [http://www1.eere.energy.gov/manufacturing/resources/chemicals/pdfs/hybrid\\_separation.pdf](http://www1.eere.energy.gov/manufacturing/resources/chemicals/pdfs/hybrid_separation.pdf)
- 3) U.S. Pat., No.4025398, Distillation Process and Apparatus, (1977)
- 4) U.S. Pat., No.423.4391, Continuous Distillation Apparatus and Method, (1980)

- 5) Mah, R.S.H., J.J.Nocholas, Jr. and R.B.Wodnik, "Distillation with Secondary Reflux and Vaporization: A Comparative Evaluation," *AIChE J.*, **23**, 651-658 (1977)
- 6) Nakaiwa, M., M. Owa, T. Akiya, M. Sato, Y. Tanaka, T. Kawabata and Y. Tomisaka, "Heat Pumps, solving Energy and Environmental Challenges," Pergamon Press, 671 (1990)
- 7) Takamatsu, T. and M. Nakaiwa, "Minimum and Total Reflux in Ideal Heat Integrated Distillation Column (HIDiC)," *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **22**, 1461-1464 (1996)
- 8) Takamatsu, T., M. Nakaiwa, T. Nakanishi and K. Aso, "Conventional Plate to Plate Calculation with Consideration of Plate to Plate Temperature Difference in Ideal Heat Integrated Distillation Column (HIDiC)," *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **22**, 1345-1350 (1996)
- 9) Takamatsu, T., M. Nakaiwa, T. Nakanishi and K. Aso, "Possibility of Energy Saving in the Ideal Heat Integrated Distillation Column (HIDiC)," *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **23**, 28-36 (1997)
- 10) Nakaiwa, M., K. Huang, M. Owa, T. Akiya, T. Nakane, M. Sato, T. Takamatsu and H.Yoshitome, "Potential Energy Savings in Ideal Heat-Integrated Distillation Column," *Applied Ther. Eng.*, **18**, 1077-1087 (1998)
- 11) Takamatsu, T., M. Nakaiwa and T. Nakanishi, "The Concept of an Ideal Heat Integrated Distillation Column (HIDiC) and its Fundamental Properties," *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **22**, 985-990 (1996)
- 12) Gadalla, M., Z. Olujic, L. Sun, A. de Rijke and P. J. Jansens, "Pinch Analysis-based Approach to Conceptual Design of Internally Heat-Integrated Distillation Column," *Ind. Eng. Chem. Res.*, **83**, 987-993 (2005)
- 13) Olujic, Z., L. Sun, M. Gadalla, A. de Rijke and P. J. Jansens, "Enhancing Thermodynamic Efficiency of Energy Intensive Distillation Columns via Internal Heat Integration," *Chem. Biochem. Eng. Q.*, **22**, 383-392 (2008)
- 14) Rivero, R., "Exergy Simulation and Optimization of Adiabatic and Diabatic Binary Distillation," *Energy*, **26**, 561-593 (2001)
- 15) Ho, T. J., C. T. Huang, L. S. Lee and C. T. Chen, "Extended Pochon-Savarit Method for Graphically Analyzing and Designing Internally Heat-Integrated Distillation Columns," *Ind. Eng. Chem. Res.*, **49**, 350-358 (2010)
- 16) Nakao, T., M. Kano and S. Hasebe, "Synthesis of Heat Integrated Distillation System with Internal Heat Exchange," Proceedings of PSE-Asia, **B-19**, Xi'an, China (2007)

- 17) Alcantara-Avila, J. R., S. Hasebe and M. Kano, "New Synthesis Procedure to Find the Optimal Distillation Sequence with Internal and External Heat Integrations," *Ind. Eng. Chem. Res.*, **52**, 4851-4862 (2013)
- 18) Harwardt, A. and W. Marquardt, "Heat-Integrated Distillation Columns: Vapor Recompression or Internal Heat Integration?," *AIChE J.*, **58**, 3740-3750 (2012)
- 19) Jansens, P. J., F. Fakhri, J. de Graauw and Z. Olujic, "Energy Saving Potential of A Heat Integrated Distillation Column," Proceeding of the AIChE 2001 Spring National Meeting, Topical Distillation Symposium, pp.19-25, Houston, USA (2001)
- 20) Iuchi, K., M. Nakaiwa and H. Tatsumi, "Application of Internally Heat Integrated Type Energy Saving Distillation Column (HIDiC)," Society of Chemical Engineers, Japan (SCEJ) 36<sup>th</sup> Autumn Meeting, **B1P03**, Sendai, Japan (2003)
- 21) Lueprasitsakul, V., S. Hasebe, I. Hashimoto and T. Takamatsu, "Study of Energy Efficiency of a Wetted-wall Distillation Column with Internal Heat Integration," *J. Chem. Eng. Japan*, **23**, 580-587 (1990)
- 22) Nakanishi, T., K. Aso, T. Takamatsu, K. Matsuda, M. Nakaiwa and S. Hasebe, "Method of Design for Packed Column Type HIDiC," Proceedings of the Distillation and Absorption 2006 (IChemE Symposium No.152), pp.851-853, London, U.K. (2006)
- 23) Bruinsma, O. S. L., T. Krikken, J. Cot, M. Saric, S. A. Tromp, Z. Olujic and A. I. Standiewicz, "The Structured Heat Integrated Distillation Column," *Chem. Eng. Res. Des.*, **90**, 458-470 (2012)

## 第2章 内部熱交換型蒸留塔(HIDiC)におけるサイド熱交換配置が省エネルギー性能に与える影響

### 2-1 緒言

これまでに提案されてきたHIDiCの構造は二重管構造やプレートフィン型熱交換器を用いるもので<sup>1)2)</sup>、処理量と製品スペックから決定される塔内負荷をもとに、内部品設計により装置サイズが決まると伝熱面積も自ずと決まるため、塔内各箇所（段塔では各段）の熱交換量は濃縮部と回収部の温度差分布に大きく依存したものとなる。可逆蒸留操作では、無限理論段数を想定し、全理論段に無限小の熱負荷を持つサイド熱交換器を有する。一方、HIDiCでは理論段数が有限なため、各段での分離の推進力（平衡線と操作線の間隔）と熱交換の推進力（熱交換する濃縮部段と回収部段の温度差）は段により異なる。何の制約もなく熱を与えられれば、回収部の最下段（リボイラー）で加熱し、濃縮部の最上段（コンデンサー）で凝縮するのが最も効率的だが、圧縮機動力とサイド熱交換に利用可能な伝熱面積が制限される条件では、温度差により可能な伝熱量は制限され、どの段に熱を加える（除去する）ことが最適かは自明ではない。すなわち、このような条件下では、リボイラー負荷を最も削減できる最適な熱交換配置（すなわち、サイド熱交換を行う段（組成）、その熱交換量、濃縮部と回収部で熱交換を行う段の組合せ）が存在すると考えられる。

サイド熱交換配置の与え方については、上述した装置構造の制約を考慮して、熱交換に寄与する理論段をグループ的に取り扱い、塔内温度分布に関連させて、グループ間の熱交換位置による省エネルギー性の比較を行っている研究報告があるものの<sup>3)4)</sup>、個々の理論段レベルでの最適化については研究が行われていないのが現状である。

本章では、よりシンプルなHIDiC構造開発の基盤研究としてサイド熱交換を行う段の組合せに着目し、Column Grand Composite Curve(CGCC)解析によるHIDiC検討の問題点を指摘したうえで、サイド熱交換配置と省エネルギー特性との関係をシミュレーションにより検討した。

### 2-2 シミュレーション条件

サイド熱交換量配置の省エネルギー性に与える影響を検討するため、問題を可能な限り簡素にし、**Table 2-1**に示すプロセスを対象に蒸留計算を行った。圧縮機動力を一定とすることで、検討系の省エネルギー性能はリボイラー負荷を直接比較することで議論することができる。また、動力として設定した80 kWは、濃縮部と回収部の間で現実的に熱交換を行う温度差を与える圧縮比の値をもと

**Table 2-1** 検討プロセス条件

Feed flow rate	[kmol/s]	1/36
Feed composition	[mole fraction]	Benzene 0.5, Toluene 0.5
Liquid molar fraction in feed	[ - ]	0.5
Separation specifications		
Benzene in distillate	[mol%]	85.0
Toluene in bottom-out	[mol%]	85.0
Number of theoretical stages		
Rectifying section	[ - ]	7 (including condenser)
Stripping section	[ - ]	7 (including reboiler)
Overall heat transfer coefficient	[W/(m <sup>2</sup> K)]	500
Compressor shaft power	[kW]	80
Compressor adiabatic efficiency	[%]	75
Pressure drop		
Theoretical stage	[kPa]	0
Condenser	[kPa]	0
Reboiler	[kPa]	0
Pressure		
Rectifying section	[kPa]	Variable
Stripping section	[kPa]	101.3

に設定し、総括伝熱係数には多管式熱交換器で検討対象プロセス流体同士を熱交換させる際、商業プラント設計で一般に用いる値を採用した。これは、本研究ではサイド熱交換のための熱交換器を塔外部に設置することも想定したためである。プロセスシミュレーションは定常平衡段モデルでインベンシス社の Pro/II<sup>®</sup>を用いて行い、気液平衡推算法には Soave-Redlich-Kwong 式を用いた。

### 2-3 CGCC 解析の問題点

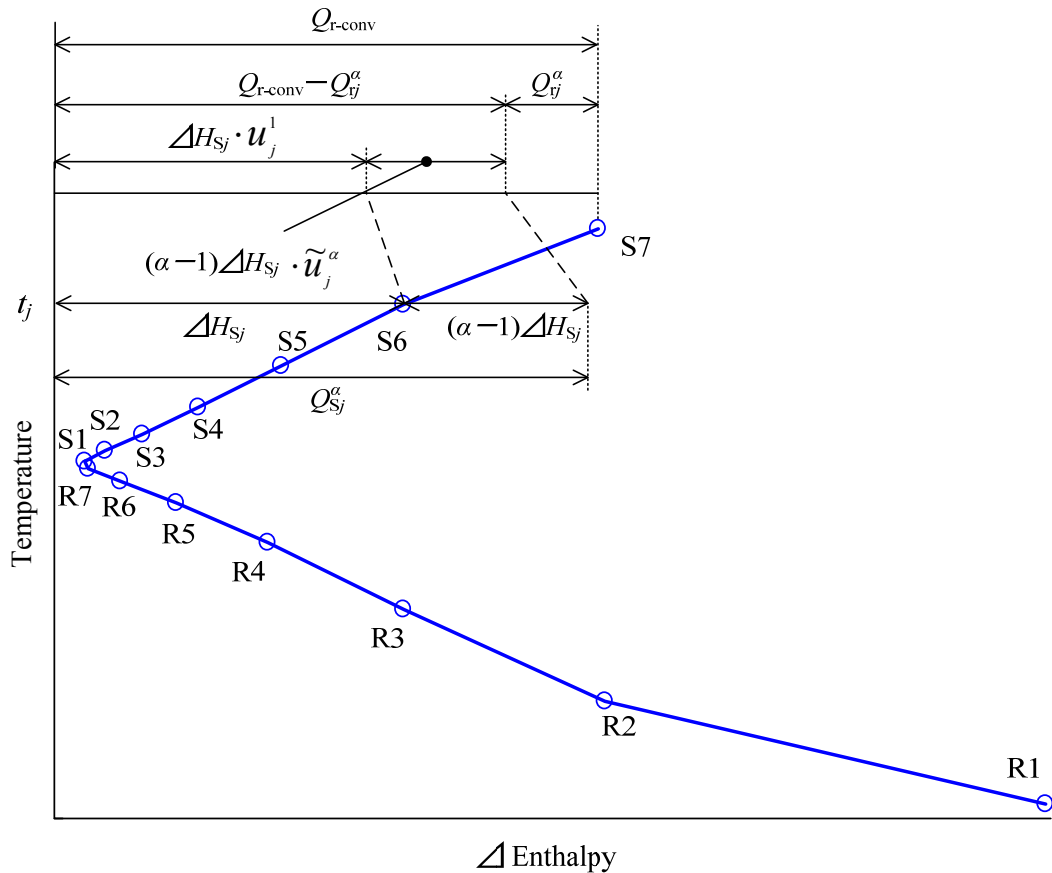
省エネルギー性の観点から蒸留塔内の熱量の過不足を適切に表現するには、一般に CGCC 解析が有益な手法とされている<sup>5)</sup>。CGCC は塔内のガスエンタルピーと液エンタルピーの差が、可逆蒸留操作における同様のエンタルピー差に対してどれだけ乖離しているかを、各温度レベルで示したものである。つまり、理想的な省エネルギー蒸留操作である可逆蒸留操作に対して、どれだけ熱量が不足（回収部）、あるいは余剰（濃縮部）かを示すものである。2-2 節で示したプロセス条件における蒸留操作を通常の蒸留で行う場合の CGCC を描くと **Figure 2-1** のようになる。ライン上の数字は理論段における状態を示している。本論文では濃縮部と回収部にそれぞれ別々に段番号をつけ  $R_i$  ,



$S_j$ と表記し、コンデンサーが濃縮部第1段(R1), リボイラーが回収部最下段 (このケースではS7) に対応する。また、操作圧力は 101.3 kPa とした。

いま、回収部のある理論段にサイドリボイラーを設置することを想定する (図では回収部第6段とした)。このとき、サイドリボイラーを設置した段の温度が  $t_j$  であれば、この位置にサイドリボイラーを設置することにより、リボイラー負荷のうち最大  $\Delta H_{Sj}$  の熱量を加熱温度  $t_j$  のサイドリボイラーで置き換えることができる。但し、サイドリボイラーを設置すれば、塔内の気液流量が変化し、分離の推進力が小さくなるため、サイドリボイラーを設置した段の温度が  $t_j$  となるように、理論段数を増加させることが必要となる。

CGCC を用いた解析は、蒸留塔の投資コストが無視できる場合は有効であるが、一般にはこのような条件は成り立たない。理論段を固定して検討する必要がある場合、CGCC の考え方を適用して現象を解析することは不適切である。



**Fig. 2-1** CGCC 解析と有限段蒸留塔におけるサイドリボイラーのリボイラー負荷削減に対する寄与

**Table 2-2** サイドリボイラーのリボイラー負荷削減寄与効果

(a)  $Q_{Sj}^{0.5} = 0.5 \times \Delta H_{Sj}$

Stage number	$\Delta H_{Sj}$ [kW]	$Q_{Sj}^{0.5}$ [kW]	$Q_{rj}^{0.5}$ [kW]	$u_j^{0.5}$ [—]
S1	30	15	537	0.61
S2	52	26	526	0.79
S3	88	44	508	0.89
S4	144	72	479	0.94
S5	228	114	436	0.97
S6	351	175	373	0.99
S7 (Reboiler)	547	273	273	1.00

(b)  $Q_{Sj}^1 = 1.0 \times \Delta H_{Sj}$

Stage number	$\Delta H_{Sj}$ [kW]	$Q_{Sj}^1$ [kW]	$Q_{rj}^1$ [kW]	$u_j^1$ [—]
S1	30	30	528	0.61
S2	52	52	506	0.78
S3	88	88	469	0.88
S4	144	144	412	0.94
S5	228	228	325	0.97
S6	351	351	200	0.99
S7 (Reboiler)	547	547	0	1.00

(c)  $Q_{Sj}^{1.5} = 1.5 \times \Delta H_{Sj}$

Stage number	$\Delta H_{Sj}$ [kW]	$Q_{Sj}^{1.5}$ [kW]	$Q_{rj}^{1.5}$ [kW]	$u_j^{1.5}$ [—]	$\tilde{u}_j^{1.5}$ [—]
S1	30	45	519	0.61	0.60
S2	52	78	486	0.78	0.77
S3	88	131	432	0.88	0.86
S4	144	216	345	0.94	0.92
S5	228	342	217	0.97	0.95
S6	351	526	30	0.99	0.97
S7 (Reboiler)	547	—	—	—	—

例として、段数を固定し、Figure 2-1 で得られた $\Delta H_{Sj}$ をもとに任意の段にサイドリボイラーを設置した場合のリボイラー負荷の削減量をシミュレーションにより求めた。結果を **Table 2-2** に示す。

**Table 2-2(a), (b), (c)**は、Figure 2-1 に示した  $Sj$  段での $\Delta H_{Sj}$ の $\alpha$ 倍 ( $\alpha = 0.5, 1.0, 1.5$ ) のサイドリボイラー負荷を与えた場合の結果である。 $\alpha$ をこれらの値に設定したのは、 $\Delta H_{Sj}$ を基準に広範囲の負荷で影響を確認するためである。表中には Figure 2-1 に示した  $Sj$  段での $\Delta H_{Sj}$ 、サイドリボイラーでの加熱量  $Q_{Sj}^\alpha$  ( $= \alpha \cdot \Delta H_{Sj}$ )、サイドリボイラー負荷を与え蒸留計算を行った結果得られるリボイラ

一負荷  $Q_{rj}^\alpha$ 、及び Eq.(2-1) で定義したサイドリボイラー負荷の有効利用度  $u_j^\alpha$  の値を示した。  $u_j^\alpha$  は、サイドリボイラーに与える熱量のうち、どれだけの熱量がリボイラー負荷の低減に寄与するかを示すもので、この指標が大きい程サイドリボイラー負荷  $Q_{sj}^\alpha$  はリボイラー負荷の低減に効率的に寄与していることになる。

$$u_j^\alpha = (Q_{r-\text{conv}} - Q_{rj}^\alpha) / (\alpha \cdot \Delta H_{sj}) \quad (2-1)$$

なお、  $Q_{r-\text{conv}}$  は省エネルギー性能の基準となる従来型蒸留塔におけるリボイラー負荷をさす。

また、 Table 2-2(c) には、 Eq.(2-1) で得られる  $u_j^\alpha$  のみでなく、サイドリボイラーに加えた  $\Delta H_{sj}$  以上の熱がどの程度有効に使われたかを検討するため、次式で得られる  $\tilde{u}_j^\alpha$  の値をあわせて示した。

$$\tilde{u}_j^\alpha = \frac{Q_{r-\text{conv}} - Q_{rj}^\alpha - \Delta H_{sj} \cdot u_j^1}{(\alpha - 1) \Delta H_{sj}} \quad (2-2)$$

Table 2-2 を見ると、  $u_j^\alpha$  は段数  $j$  に大きく依存するが、そこに加えた熱量にはあまり影響されないことがわかる。このことは  $\Delta H_{sj}$  以上の熱を加えた場合( Table 2-2(c) ) においてもいえる。以上の結果より、CGCC から得られる情報は装置コストを無視し無限段数を仮定できる場合においては有効であるが、段数が固定されているケースでは、省エネルギー性能の高い熱交換量選定には有効な情報を多く含んでいないことが分かる。更にHIDiCでは熱交換を行う段の組合せを定める必要があり、CGCC はそのような組を選定するのに必要な情報を有していない。

以上の点を踏まえ、次節以下では単一の段間の熱交換、多段間の熱交換について省エネルギー性能の高い構造について検討する。

## 2-4 サイド熱交換段の組合せに関する検討手法

### 2-4-1 単一段間熱交換による検討手法

まず、熱交換する段の組合せが、どれだけ省エネルギー性に寄与するか把握するため、 **Figure 2-2** に示すような濃縮部と回収部の1つの理論段間のみで熱交換を行う HIDiC モデルでプロセスシミュレーションを行った。濃縮部の任意の理論段  $i$  に1つだけ設置したサイドコンデンサーと、回収部の任意の理論段  $j$  に1つだけ設置したサイドリボイラーの間で熱交換し、それぞれの組合せに対して分離スペックを満たすリボイラー負荷  $Q_r'$  を算出した。なお、先述のとおり本論文では熱交換器が塔外部に設置されることも想定し、サイド熱交換器と呼ぶこととする。サイド熱交換器の伝熱面

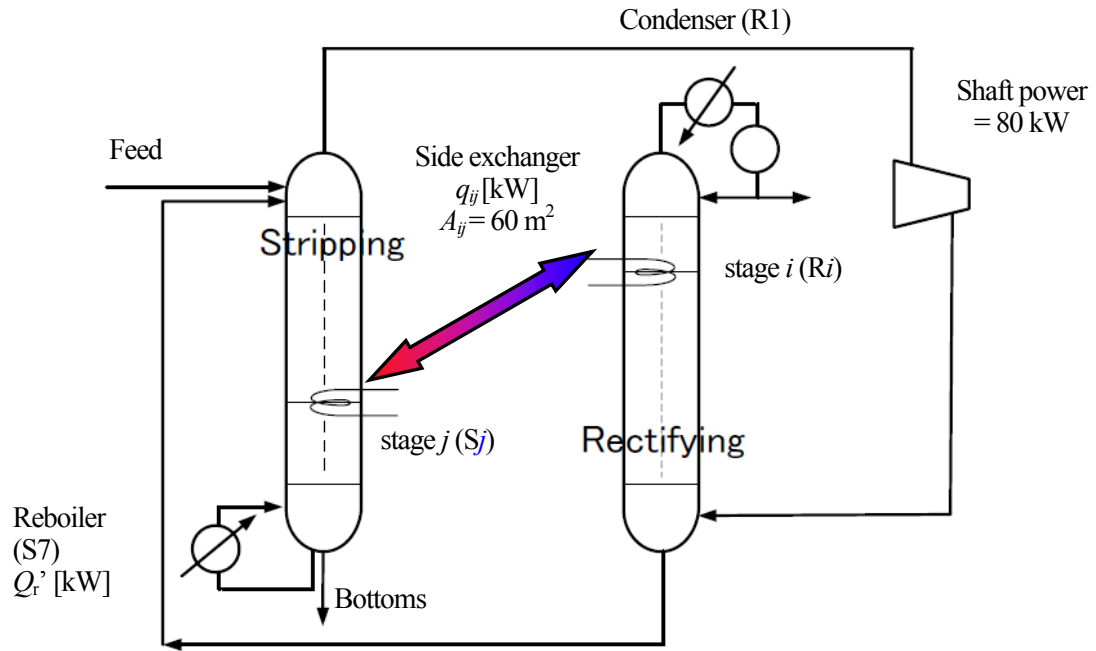


Fig. 2-2 単一段間熱交換のHIDiCスキーム図

積 $A_{ij}$ は $60.0 \text{ m}^2$ で一定とした。この伝熱面積は、従来型蒸留操作で2-2節に示した分離を行うケースにおいて、缶出製品温度に対して15–20 K程度高いスチームを供給した際のリボイラーの伝熱面積に相当する。また、操作圧力101.3 kPaで従来型蒸留操作を行った際のリボイラー負荷 $Q_{r\text{-conv}}$ は、2-2節の条件下では547 kWとなる。

$Q_r'$ が $Q_{r\text{-conv}}$ よりどれほど小さいかが、指定した段間での熱交換の効果を示す。そこで次式で定義される $ESI_{ij}$ を濃縮部 $i$ 段( $Ri$ )と回収部 $j$ 段( $Sj$ )の熱交換の省エネルギー性指標と呼ぶことにする。

$$ESI_{ij} = (Q_{r\text{-conv}} - Q_r') / Q_{r\text{-conv}} \quad (2-3)$$

本検討では、圧縮機動力を一定としているため、上記の省エネルギー性指標により省エネルギー性を直接比較できるだけでなく、サイド熱交換器の伝熱面積を一定としたことで、系の装置投資コストを概ね一定とした条件で、省エネルギー性を比較することができる。

なお、混合成分であることからサイド熱交換器での凝縮、蒸発の際には、流れの温度が変化する。よって熱交換量 $q_{ij}$ を求める際には、下記のように対数平均温度差を用いた。

$$q_{ij} = U \cdot A_{ij} \cdot LMTD_{ij} \quad (2-4)$$

$$LMTD_{ij} = \frac{(T_{i+1} - t_j) - (T_i - t_{j-1})}{\ln \{(T_{i+1} - t_j) / (T_i - t_{j-1})\}} \quad (2-5)$$

ここで  $T_i$ ,  $t_j$  は, それぞれ濃縮部の  $i$  段, 回収部の  $j$  段における温度である.

## 2-4-2 複数段間熱交換による検討手法

これまで提案されている多くの HIDiC は, 同心円型構造でコンデンサーを除く濃縮部とリボイラーを除く回収部を並列に設置し, その際に隣り合う段間あるいは位置で熱交換を行っている. このような構造の HIDiC では, 塔内部品に充填物が用いられる場合でも蒸留計算をする際に平衡段を想定し, 濃縮部と回収部の隣り合う各段のあいだで熱交換するモデルと近似することができる<sup>1)</sup>. 更にここでは, 各サイド熱交換器の伝熱面積を一定と仮定してシミュレーション検討を行った(Figure 2-3 参照). このような仮定のもとでは, 本章で対象とした系は濃縮部段数と回収部段数が同じとなる段が最適原料供給段となった. 圧縮機動力を 80 kW のまま一定とし, 内部熱交換量の合計値が, 同一段数の従来型蒸留操作におけるリボイラー負荷( $Q_{R\text{-conv}} = 547 \text{ kW}$ )と同一になるような内部熱交換の伝熱面積を求めると  $86.2 \text{ m}^2$  となった. 各サイド熱交換器の熱交換量, 対数平均温度差, および伝熱面積を Table 2-3 に示す. また, このときのリボイラー負荷は 135 kW となった.

無限理論段数を想定し, 全理論段に無限小の熱負荷を持つサイド熱交換器を設置する可逆蒸留操

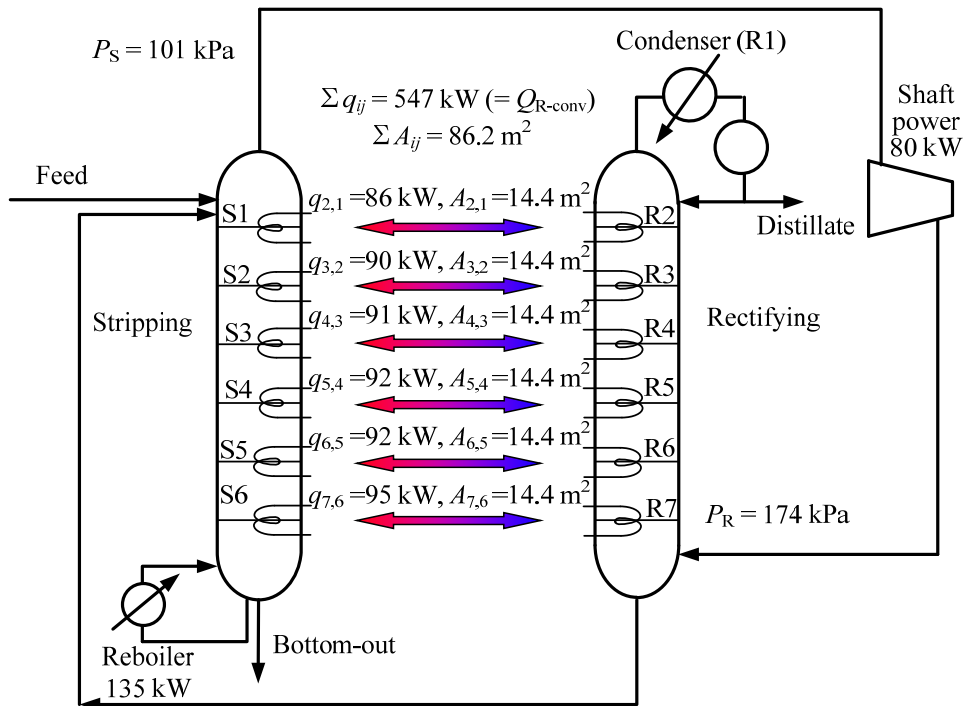


Fig. 2-3 同心円型二重管式 HIDiC の省エネルギー性能

**Table 2-3** 同心円型二重管式 HiDiC の内部熱交換量配置

Integration	Side exchanger duty, $q_{ij}$ [kW]	$LMTD_{ij}$ [K]	$A_{ij}$ [m <sup>2</sup> ]
S1-R2	86	12.0	14.4
S2-R3	90	12.5	14.4
S3-R4	91	12.7	14.4
S4-R5	92	12.8	14.4
S5-R6	92	12.8	14.4
S6-R7	95	13.3	14.4
Total	547	—	86.2

作と異なり，HiDiC では理論段数が有限なため，塔内各箇所の熱移動量は有限の値を持つ．分離，あるいは熱交換の推進力は理論段により異なるため，最大の省エネルギー性能を与える塔内各箇所の熱交換量には最適状態が存在すると考えられる．ここでは単一段間熱交換の検討で得られる  $ESI_{ij}$  が同一面積の熱交換器を設置した際のリボイラー負荷の削減率を表していることに着目し， $ESI_{ij}$  の比でサイド熱交換量を配分することを考える．すなわち，まず熱交換段の組数と熱交換する段の組合せを決め，次に段間のサイド熱交換量の比が対応する  $ESI_{ij}$  の大きさの比と等しくなるように，サイド熱交換器の伝熱面積を設定する．サイド熱交換器の伝熱面積の合計  $\Sigma A_{ij}$  は，同心円型構造の HiDiC に対するシミュレーションで得られている 86.2 m<sup>2</sup> とし，圧縮機動力も 80 kW で一定とした．これにより，装置投資コストがほぼ同じ条件で，省エネルギー性はリボイラー負荷で直接比較できる．

## 2-5 サイド熱交換配置の最適化

### 2-5-1 単一段間熱交換による検討結果

シミュレーション結果から得られた熱交換段の各組合せにおける  $ESI_{ij}$ 、 $q_{ij}$  及び濃縮部と回収部の圧力比の値を，Table 2-4(a)–(c) に示す．更に，濃縮部理論段と回収部理論段をそれぞれ  $x, y$  軸とした際の， $ESI_{ij}$  の等高線を Figure 2-4 に示す．各サイド熱交換における計算結果は図中の各目盛の交点であるが，各点の間も  $ESI_{ij}$  の値を平滑して表現している．同じ伝熱面積で熱交換する場合でも，省エネルギー性に優れる組合せ領域が存在することが分かる．すなわち，本例では濃縮部の 3–4 段目と回収部の 5–6 段目の間で熱交換することにより，高い省エネルギー性を得ることができる．

Table 2-4(a)において、濃縮部の上部と回収部の下部を熱交換する場合、省エネルギー性指  $ESI_{ij}$  は小さな値をとっている。これは、以下の様な理由による。一対の熱交換において、総括伝熱係数と伝熱面積を一定としていることから、Table 2-4(b)はサイド熱交換器の対数平均温度差を示している

**Table 2-4** 単一段間熱交換による HIDiC の性能

(a) 省エネルギー性指標,  $ESI_{ij}$

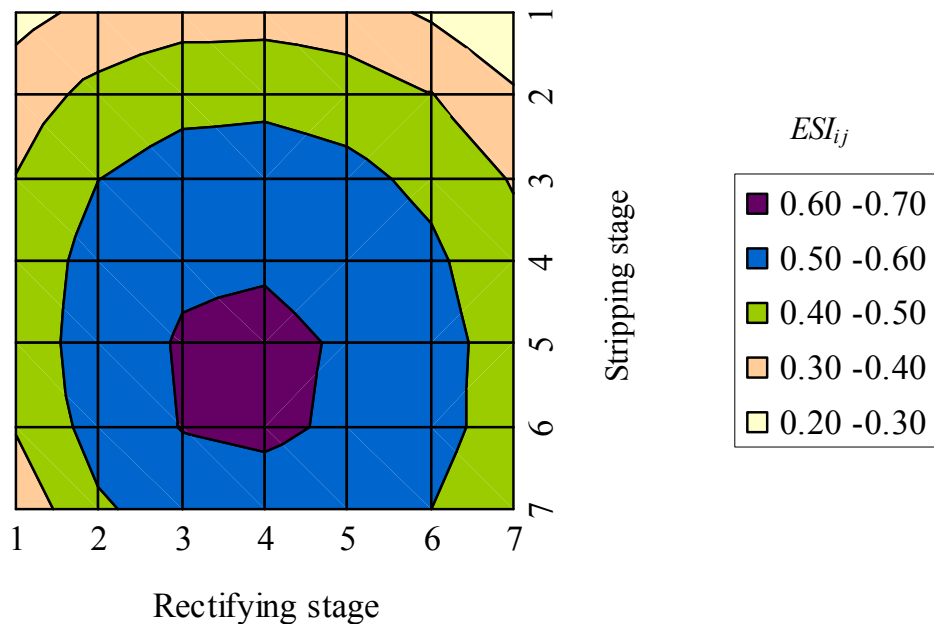
		Rectifying stage						
		1	2	3	4	5	6	7
Stripping stage	1	0.267	0.328	0.360	0.363	0.341	0.288	0.196
	2	0.350	0.429	0.469	0.475	0.454	0.403	0.316
	3	0.403	0.499	0.543	0.550	0.528	0.476	0.392
	4	0.431	0.539	0.588	0.593	0.572	0.519	0.436
	5	0.434	0.555	0.608	0.616	0.593	0.537	0.455
	6	0.408	0.543	0.603	0.612	0.590	0.535	0.451
	7	0.335	0.484	0.557	0.573	0.553	0.500	0.422

(b) サイド熱交換量,  $q_{ij}$

		Rectifying stage						
		1	2	3	4	5	6	7
Stripping stage	1	259	330	377	405	424	441	472
	2	255	321	361	384	400	416	449
	3	254	318	355	374	387	400	431
	4	250	316	351	367	378	390	419
	5	242	311	346	362	372	380	404
	6	222	296	334	350	358	365	384
	7	180	261	305	323	331	334	349

(c) 濃縮部と回収部間の圧力比

		Rectifying stage						
		1	2	3	4	5	6	7
Stripping stage	1	1.74	1.71	1.69	1.67	1.65	1.62	1.58
	2	1.78	1.76	1.74	1.73	1.71	1.68	1.62
	3	1.81	1.80	1.79	1.77	1.75	1.72	1.66
	4	1.83	1.82	1.81	1.80	1.78	1.74	1.69
	5	1.84	1.84	1.83	1.82	1.80	1.76	1.70
	6	1.85	1.84	1.84	1.83	1.81	1.77	1.72
	7	1.85	1.85	1.84	1.83	1.82	1.78	1.73



**Fig. 2-4** 単一段間熱交換 HIDiC の組合せによる省エネルギー性指標

ことと等価である。濃縮部の上部と回収部の下部を熱交換する場合、通常の蒸留操作で最も温度差がある段間の温度を逆転させて熱交換させるため、圧縮機動力一定のもとではこのようなサイド熱交換段間の温度差は小さくなる。一方、濃縮部の上部と回収部の下部の熱交換は、同一の熱量を授受するのであれば、他の部分での熱交換に比べリボイラー負荷の削減効果は大きい。よって、回収部塔頂から圧縮機に流入するガス流量は最も少なくできる。圧縮機動力を一定としていることから、圧縮機への流入ガス流量の減少は圧縮比の上昇につながる。Table 2-4(c)で左下にいくほど、他の組合せに比べて圧縮比が高くなるのは、この理由による。今回の条件設定では圧縮比上昇による濃縮部と回収部の温度差拡大より、濃縮部の上部と回収部の下部を選んだことによる温度差減少の方が大きく、その両方の効果の結果として Table 2-4(b)の左下にいくにつれ熱交換量は減少している。これが、濃縮部の上部と回収部の下部を選んだ際に高い省エネルギー性が得られない理由である。

濃縮部の下部、あるいは回収部の上部を用いる熱交換では、Table 2-4(b)にあるようにサイド熱交換負荷は大きいにも関わらず省エネルギー性能は高くない。これは前節で示したように、原料供給段近くで与えるサイド熱交換負荷はリボイラー負荷低減への寄与が小さいためと考えられる。



## 2-5-2 複数段間熱交換による検討結果

連続した段において熱交換するという仮定のもとでは、サイド熱交換器設置数 6（同心円型二重管式構造の HIDiC と同数）の場合、4つの組合せ、すなわち、(S1-R1, S2-R2, ..., S6-R6), (S1-R2, S2-R3, ..., S6-R7), (S2-R1, S3-R2, ..., S7-R6), (S2-R2, S3-R3, ..., S7-R7) が考えられる。これらの各組に対して、2-4-2 項で説明した方法により伝熱面積を定め、シミュレーションによりリボイラー負荷を求めた。得られた中で最も高い省エネルギー性を示す組合せ(S2-R1, S3-R2, ..., S7-R6)に対する段間の熱交換量、基準とした  $ESI_{ij}$ 、対数平均温度差、伝熱面積の値を **Table 2-5(a)**に示す。同様に、熱交換段の組数が 5-1 の場合についても、最も高い省エネルギー性能を示す組合せの結果を、それぞれ **Table 2-5(b)–(f)**に示す。例として、熱交換段組数が 4 の場合のプロセスフローを **Figure 2-5**に示す。また、**Table 2-5(g)**には、同心円型二重管式構造の HIDiC と同じ熱交換段の組合せ (S1-R2, S2-R3, ..., S6-R7)だが、内部熱交換量の配分を  $ESI_{ij}$  によって与えた場合の結果を示した。なお、Table 2-5(a)–(f)中の括弧内の数値は、後述する数値最適化により得られた結果を示している。更

**Table 2-5** 複数段間熱交換による HIDiC の性能

(a) No. of the pairs of heat exchangers: 6

Integration	Side exchanger duty [kW]		$ESI_{ij}$ [—]	$LMTD_{ij}$ [K]	$A_{ij}$ [m <sup>2</sup> ]
S2-R1	57	(24)	0.350	10.8	10.5
S3-R2	81	(72)	0.499	11.5	14.1
S4-R3	95	(84)	0.588	11.9	16.1
S5-R4	100	(173)	0.616	12.0	16.6
S6-R5	96	(85)	0.590	12.2	15.7
S7-R6	81	(72)	0.500	12.3	13.2
Total	510	(509)	—	—	86.2

(b) No. of the pairs of heat exchangers: 5

Integration	Side exchanger duty [kW]		$ESI_{ij}$ [—]	$LMTD_{ij}$ [K]	$A_{ij}$ [m <sup>2</sup> ]
S3-R2	92	(91)	0.499	11.7	15.6
S4-R3	108	(108)	0.588	11.8	18.3
S5-R4	113	(119)	0.616	11.9	19.1
S6-R5	108	(108)	0.590	12.0	18.1
S7-R6	92	(87)	0.500	12.2	15.1
Total	513	(513)	—	—	86.2

(The values in parentheses are results of the optimization.)

(次頁へ続く)

(c) No. of the pairs of heat exchangers: 4

Integration	Side exchanger duty [kW]		$ESI_{ij}$ [—]	$LMTD_{ij}$ [K]	$A_{ij}$ [m <sup>2</sup> ]
S4-R2	115	(110)	0.539	11.3	20.4
S5-R3	130	(130)	0.608	11.4	22.9
S6-R4	131	(131)	0.612	11.5	22.8
S7-R5	118	(124)	0.553	11.8	20.1
Total	495	(495)	—	—	86.2

(d) No. of the pairs of heat exchangers: 3

Integration	Side exchanger duty [kW]		$ESI_{ij}$ [—]	$LMTD_{ij}$ [K]	$A_{ij}$ [m <sup>2</sup> ]
S5-R3	166	(199)	0.608	11.3	29.5
S6-R4	168	(165)	0.612	11.2	30.0
S7-R5	152	(121)	0.553	11.4	26.6
Total	486	(485)	—	—	86.2

(e) No. of the pairs of heat exchangers: 2

Integration	Side exchanger duty [kW]		$ESI_{ij}$ [—]	$LMTD_{ij}$ [K]	$A_{ij}$ [m <sup>2</sup> ]
S5-R3	225	(225)	0.608	10.8	41.5
S6-R4	244	(244)	0.612	10.9	44.7
Total	468	(468)	—	—	86.2

(f) No. of the pairs of heat exchangers: 1

Integration	Side exchanger duty [kW]		$ESI_{ij}$ [—]	$LMTD_{ij}$ [K]	$A_{ij}$ [m <sup>2</sup> ]
S5-R4	446	(446)	0.616	10.4	86.2
Total	446	(446)	—	—	86.2

(g) Same heat exchanger manner as concentric HiDiC proposed so far

Integration	Side exchanger duty [kW]		$ESI_{ij}$ [—]	$LMTD_{ij}$ [K]	$A_{ij}$ [m <sup>2</sup> ]
S1-R2	61	(-)	0.328	12.2	10.1
S2-R3	88	(-)	0.469	12.5	14.0
S3-R4	103	(-)	0.550	12.6	16.4
S4-R5	107	(-)	0.572	12.6	17.0
S5-R6	101	(-)	0.537	12.6	15.9
S6-R7	85	(-)	0.451	13.3	12.8
Total	544	(-)	—	—	86.2

(The values in parentheses are results of the optimization.)

**Table 2-6** 伝熱面積が一定となるよう調節した際の  
HIDiC のリボイラー負荷

No. of integration stages	Reboiler duty [kW]	
6 <sup>*</sup>	135	( — )
6 <sup>**</sup>	130	( — )
6	93	( 88 )
5	84	( 84 )
4	77	( 77 )
3	86	( 86 )
2	99	( 99 )
1	137	( 137 )
0 <sup>***</sup>	547	( — )

\*: Concentric HIDiC proposed so far, corresponding to Figure 2-3 and Table 2-3.

\*\*: This case corresponds to Table 2-5(g) above.

\*\*\*: Conventional distillation

(The values in parentheses are results of the optimization.)

に, これらのシミュレーションから得られたリボイラー負荷をまとめて **Table 2-6** に示した. Table 2-6 中の括弧内の数値も先と同様で, 後述する数値最適化の結果を示している.

これまで提案されてきた同心円型二重管式 HIDiC を平衡段モデルで検討した結果(Table 2-3, リボイラー負荷 135 kW は Table 2-6 中に記載 )と, Table 2-5(g)の結果(リボイラー負荷 130 kW は Table 2-6 中に記載) を比較すると, 同一の熱交換段組数と段の組合せであっても,  $ESI_{ij}$  に基づき内部熱交換量を配分するだけで, リボイラー負荷は 4 %程度改善されることが分かる. 更に, 同一の熱交換段組数で熱交換段の組み合わせの最適化を行った Table 2-5(a)のケースでは, リボイラー負荷は 93 kW (Table 2-6 中に記載) となり, 同心円型二重管式構造の HIDiC に対して 31 %削減された. この場合, 各熱交換器の伝熱面積は一定ではなく, 与えられた熱交換段の組合せにおいて個々のサイド熱交換器で適切な値が存在することがわかる. サイド熱交換器数も変化させた場合, 熱交換段組数を 4 に限定した場合がリボイラー負荷を最も削減でき, その際のリボイラー負荷は 77 kW (Table 2-6 中に記載)で, 同心円型二重管式構造の HIDiC に対して 43 %削減された.

熱交換段組数が 4 の場合, 熱交換を行う段の組み合わせは, (S1-R1, S2-R2, S3-R3, S4-R4), (S1-R2, S2-R3, S3-R4, S4-R5),  $\dots$ , (S1-R4, S2-R5, S3-R6, S4-R7), (S2-R1, S3-R2, S4-R3, S5-R4),  $\dots$ , (S4-R4, S5-R5, S6-R6, S7-R7) の 16 通り存在する. 上述した最適な組み合わせは, この 16 通りの中で Table 2-4(a)に示した  $\Sigma ESI_{ij}$  の値を最大にするものである. 他の熱交換段組数の場合についても,  $\Sigma ESI_{ij}$  の値の最も大きい, あるいはそれに次ぐ組み合わせが最適となっている. よって, 厳密に証明はでき

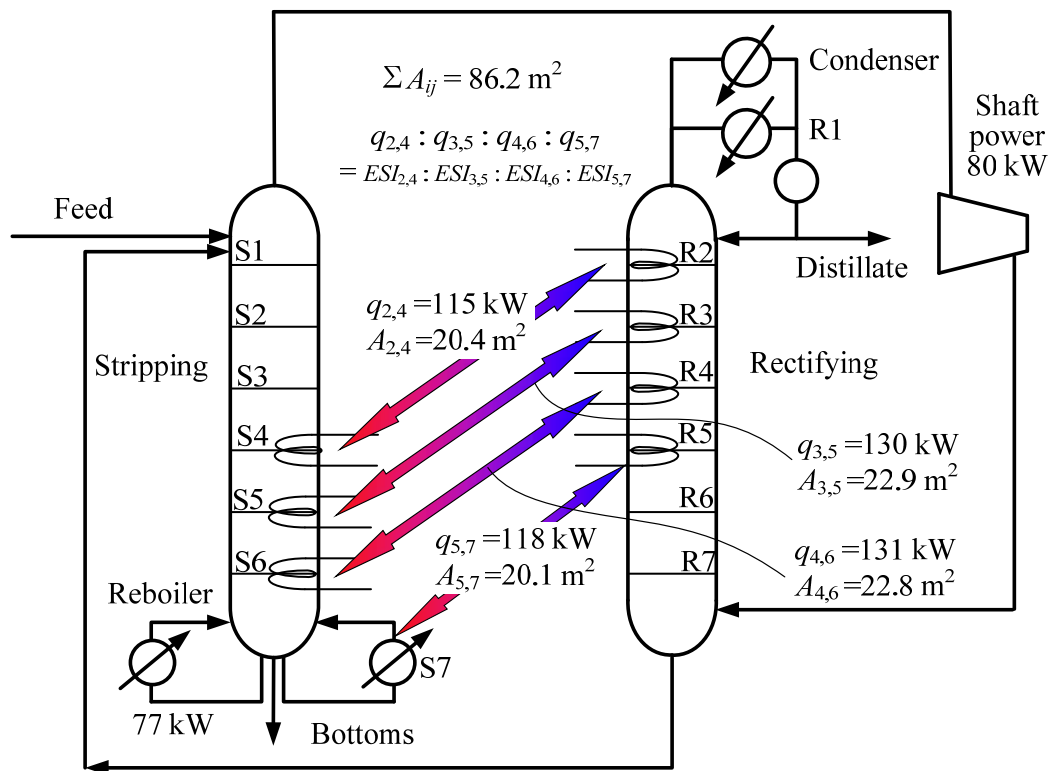


Fig. 2-5 4 段階熱交換 HIDiC のシミュレーション結果

ないが， $ESI_{ij}$  の値をもとに探索範囲を限定することが可能と考えられる。

### 2-5-3 サイド熱交換配置の最適化

省エネルギー性指標  $ESI_{ij}$  に基づきサイド熱交換量を配分させることで，高い省エネルギー性が得られることが分かったが，得られた熱交換の配置が省エネルギー性に関して最適化された状態とどの程度異なるかは明確ではない．そこで，数理的に最適なサイド熱交換の配置を算出し，省エネルギー性指標に基づき得られた結果と比較した．

最適化に際しては，熱交換段組数と段の組み合わせを固定した条件下で，リボイラー負荷  $Q_r$  を最小とするサイド熱交換器の伝熱面積の配分を求めた．制約条件は，上述の複数段階熱交換の検討同様に，圧縮機動力を 80 kW で一定とし，サイド熱交換器の伝熱面積の合計を 86.2 m<sup>2</sup> とした．最適化の手順を以下に示す．

- i) 熱交換を行う段の組数を与える．
- ii) 熱交換を行う段の組み合わせを与える．

- iii)  $\Sigma A_{ij}$  一定の制約下で,  $Q_r$  を最小とする  $\{A_{ij}\}$  の値を求める.
- iv) 全ての段の組み合わせが計算されていなければ, ii)へ戻る.
- v) ステップ ii)–iv)で得られた解の中で,  $Q_r$  を最小とするものを, 与えられた熱交換段組数のもとでの最適解とする.

上記ステップ(iii)における最適化計算は勾配法にて行った. なお, 収束判定誤差は前回の探索時におけるリボイラー負荷との差異が 0.05 kW 未満とした.

上記の最適化方法により得られたサイド熱交換を行う段の組合せ, サイド熱交換量, およびリボイラー負荷を Table 2-5(a)–(g), Table 2-6 中に括弧書きで示した. これらの結果から分かるように, 省エネルギー性指標に基づき配分されたサイド熱交換量と最適化により得られたサイド熱交換量は良く一致している. また, 省エネルギー性能を示すリボイラー負荷については極めてよく一致している. これにより提案した省エネルギー性指標は, 煩雑な最適化計算を行うことなく, 省エネルギー性が最も高くなるサイド熱交換配置を簡単に推定できる極めて有用な指標であるといえる.

## 2-6 結言

内部熱交換型蒸留塔 (HIDiC) において, 圧縮機動力と合計伝熱面積をそれぞれ一定とした条件の下では, 適切なサイド熱交換配置を与えることで, 単に塔内温度分布に依存して内部熱交換量を決める場合に比べて, 高い省エネルギー性能を得ることができることを, 例題を用いて示した. そして, その適切な熱交換量配置は, 濃縮部と回収部の一对の段間の熱交換を施したシミュレーションから得られる「省エネルギー性指標」から, 類推できることを示した. シミュレーション結果は, 全ての段間で熱交換しなくても, 適切な段間に少数のサイド熱交換器を設置すれば, これまで提案されてきた同心円型構造の HIDiC よりも高い省エネルギー性能を得られることを示している. この結果は, 今後より簡単な構造でメンテナンス性に優れた HIDiC の構造を検討する際の指針になるものと考えられる.

## 2-7 記号

$A_{ij}$	heat transfer area of heat exchanger assigned between stage $i$ and stage $j$	[m <sup>2</sup> ]
$ESI_{ij}$	energy saving index defined by Eq.(3)	[ - ]
$\Delta H_s$	enthalpy difference on CGCC in stripping section	[kW]
$LMTD_{ij}$	log mean temperature difference between stage $i$ and stage $j$	[K]

$Q_{r\text{-conv}}$	reboiler duty in conventional distillation system	[kW]
$Q_r'$	reboiler duty in HIDiC having single heat exchanger	[kW]
$Q_{rj}^\alpha$	reboiler duty for the case where $Q_{Sj}^\alpha$ is added to side reboiler assigned at stage $j$	[kW]
$Q_{Sj}^\alpha$	$= \alpha \cdot \Delta H_S$ : heat duty of side reboiler assigned to stage $j$ in conventional distillation column	[kW]
$q_{ij}$	heat duty exchanged between stage $i$ and stage $j$	[kW]
$T$	temperature in rectifying section	[K]
$t$	temperature in stripping section	[K]
$U$	overall heat transfer coefficient	[W/(K m <sup>2</sup> )]
$u_j^\alpha$	effective contribution ratio of side reboiler duty to reduce reboiler duty	[ - ]
$\tilde{u}_j^\alpha$	effective contribution ratio of side reboiler duty to reduce reboiler duty for the portion greater than $\Delta H_S$	[ - ]
(Greek letters)		
$\alpha$	multiple factor to $\Delta H_S$	[ - ]
(Subscript)		
$i$	arbitrary stage in rectifying section	
$j$	arbitrary stage in stripping section	
R	rectifying section	
r	reboiler	
S	stripping section	

## 2-8 参考文献

- 1) Horiuchi, K., M. Nakaiwa, K. Iwakabe, K. Matsuda and M. Toda, "Intensification of the Process Flow in the Pilot Plant of an Internally Heat-Integrated Distillation Column (HIDiC)," *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **34**, 70-75 (2008)
- 2) Bruinsma, O. S. L., S. A. Tromp, M. Strijker, A. Malhotra, M. Saric, J. Cot and Z. Olujic, "Heat Integrated Distillation Using a Plate-fin Heat Exchanger," Proceedings, CHISA, Prague, (2010)  
[ftp://ftp.ecn.nl/pub/www/library/report/2010/m10091.pdf\\_X](ftp://ftp.ecn.nl/pub/www/library/report/2010/m10091.pdf_X)
- 3) Gadalla, M., Z. Olujic, L. Sun, A.De. Rijke and P.J. Jansens, "Pinch Analysis-Based Approach to Conceptual Design of Internally Heat-Integrated Distillation Columns," *Chem. Eng. Res. Des.*, **83**, 987-993 (2005)

- 4) Olujic, Z., L. Sun, M. Gadalla, A. de Rijke and P. J. Jansens, "Enhancing Thermodynamic Efficiency of Energy Intensive Distillation Columns via Internal Heat Integration," *Chem. Biochem. Eng. Q.*, **22**, 383-392 (2008)
- 5) Dhole, V.R. and B. Linnhoff, "Distillation Column Targets," *Comput. Chem. Eng.*, **17**, 549-560 (1993)

## 第3章 $H$ - $xy$ 線図と $T$ - $xy$ 線図を用いた内部熱交換型蒸留塔(HIDiC)の設計手法

### 3-1 緒言

これまで開発されてきた HIDiC は SRV 蒸留法が提案されて以来、濃縮部と回収部を並列設置し隣り合う段間で、全段あるいは濃縮部と回収部のうち少ない段数を有する方の全段で熱交換を行うことが前提とされてきたが、前章にて個々の段の物理的な位置とは無関係に、限られた適切な段間で熱交換を行うことで、より優れた省エネルギー性能を得られることを示した。しかし、その理論は十分検討されておらず、更なる研究の余地を残していた。

有限数のサイド熱交換を行う有限段を有する HIDiC の設計は、混合整数非線形計画法 (Mixed-Integer Nonlinear Programming, 以下 MINLP) にて定式化することが原理的には可能である。しかし、濃縮部と回収部における全ての段の組合せで熱交換を許容する場合、段の組合せに関連するだけでもかなりの数のバイナリ変数が必要となり、これに伴い計算時間も増大する。MINLP を用いた HIDiC の内部熱交換量配置に関しては Harwardt と Marquardt<sup>1)</sup>が報告しているが、内部熱交換段の組合せに起因するバイナリ変数の増加を抑制するため、濃縮部と回収部を並列設置した際の隣り合う段間での熱交換のみを許容しているのが実情である。概念設計の初期段階では、理論段数、リボイラー負荷、圧縮機動力、伝熱面積など、さまざまな設計条件に対して、サイド熱交換を行う段、段の組合せ、熱交換量に関して、速やかに評価を行う必要がある。このような場合、MINLP を活用して検討を行うことは計算時間の観点から不適切である。

蒸留塔の必要段数に関する検討には、McCabe-Thiele 法がよく用いられるが、この手法では塔内のエンタルピーに関する情報を直接得ることができないこと、濃縮部あるいは回収部で等モル流れを仮定すること、2 成分間の混合熱を考慮できないなどの問題がある。このため、塔内の熱的な挙動を議論することは不適である。塔内の熱的な挙動を議論する際には、ピンチ解析である Column Grand Composite Curve 解析 (以下、CGCC 解析) が 2 塔間の熱統合や、様々な温度レベルの用役の利用を検討する際に有効であることが知られている<sup>2)</sup>。しかし、前章にて指摘したとおり、段数一定のもとで蒸留塔を検討する際に CGCC 解析を用いることは不適切である。これは、有限段のもとでは、サイド熱交換器を設置する段により、リボイラー負荷やコンデンサー負荷の削減効果が大きく異なることを CGCC 解析では考慮できないため、得られる省エネルギー性能に大きな誤差を生じてしまうためである。また、Gadalla ら<sup>3)</sup>は熱力学的設計と塔内部品のハイドロリクス性能を評価することによる塔サイジングを順次行う設計手法を提案したが、この熱力学的設計も CGCC 解析と類



似した Column Composite Curve 解析を用いたもので、先に指摘したサイド熱交換において供給・除去する熱量分だけリボイラー・コンデンサー負荷を削減できないことを考慮できない。そのうえ、内部熱交換を行う段の組合せは、濃縮部と回収部の位置的な制約を与えている。

一方、塔内のエンタルピー変化を図解的に表現する方法には Ponchon-Savarit 法があり、これまで提案されてきている同心円型構造の HIDiC への適用方法も Ho ら<sup>4)</sup>により報告されている。しかしながら Ho らの研究では、限られた段間でサイド熱交換を行うこと、あるいはこれらのサイド熱交換を離散的に与えることを想定していないため、このような熱交換を検討しようとしてもどの段にサイド熱交換器を設置すべきか、濃縮部と回収部のどの段の間で熱交換を行うか、あるいは各サイド熱交換器にどれだけの熱交換量を与えるべきかについて何ら指針を得ることができない。

そこで本章では、塔内の挙動を正確に把握し、プロセスシミュレーターによる HIDiC の厳密計算を行う際の指針を与えるため、Ponchon-Savarit 法で用いるような  $H$ - $xy$  線図を用いる設計手法を提案する。離散的で限られた段間での熱交換を行う HIDiC の熱力学的な検討を行うことができるよう、Ponchon-Savarit 線図を大幅に改良し、更に  $T$ - $xy$  線図を統合した。提案する手法は概念設計の初期段階で、検討対象系への HIDiC 適用の実現性や省エネルギー性能を速やかに評価できる手法として活用でき、これに引き続き行う厳密計算に対して指針を与えることをターゲットとしている。そして、提案する手法について、ケーススタディーを通した方法の有効性と、概念設計段階で有用に活用できるかについて確認した結果を詳述する。

### 3-2 $H$ - $xy$ 線図と $T$ - $xy$ 線図を用いた HIDiC の設計手法

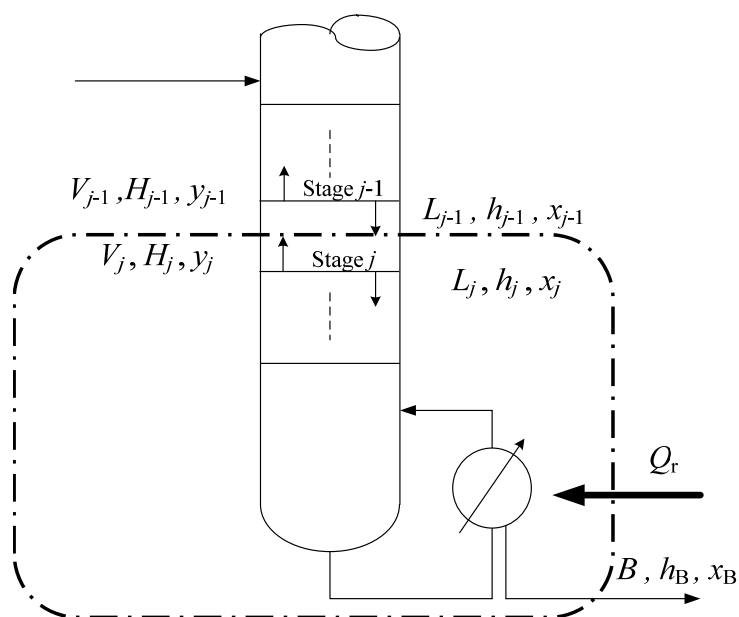
Ponchon-Savarit 法は、今日は広く利用されているとは言い難い。このため、まず Ponchon-Savarit 法について概説し、その後これをどのように HIDiC に適用するかについても言及しつつ、提案する設計手法について説明する。

#### 3-2-1 Ponchon-Savarit 線図

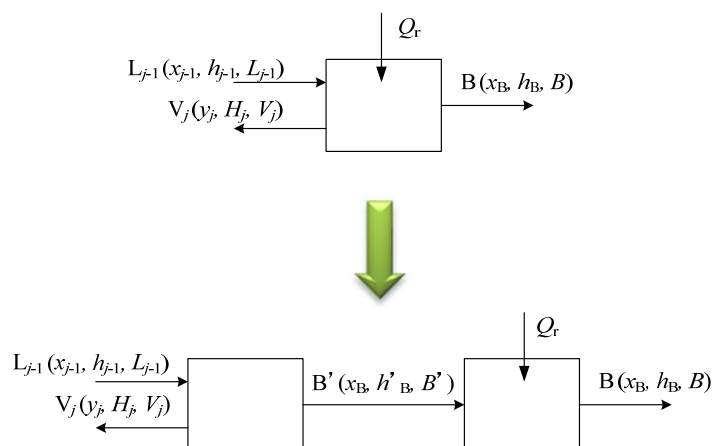
McCabe-Thiele 法が多く書籍で取り上げられている一方で、Ponchon-Savarit 法はあまり紹介されず、したがってその手法そのものの認知度が低いことは否めない。しかし、McCabe-Thiele 法が、濃縮部や回収部におけるセクション内でモル流量を一定としているのに対して、Ponchon-Savarit 法は任意の組成におけるエンタルピーを考慮することができるため、モル流量を一定と仮定する必要

がなく，特に非理想性が強い場合などでは，McCabe-Thiele 法に比べて正確に設計を行うことができ，より正確に技術背景を理解することが可能となる．

McCabe-Thiele 法では  $xy$  線図を利用して蒸留操作を表現しようとするのに対して，Ponchon-Savarit 法では  $H$ - $xy$  線図（エンタルピー組成線図）を用いた図解法により蒸留操作を表現する．このように蒸留対象の混合物のエンタルピーを用いるため，物質の顕熱・潜熱のみならず，混合熱なども考慮することができることが大きな特徴である．



**Fig. 3-1** Ponchon-Savarit 法関係式導出のための回収部エンベロープ表現



**Fig. 3-2** 回収部エンベロープのブロックフロー表現

$H$ - $xy$  線図上に蒸留操作を表現するに際して、基本となる考え方について述べる。Figure 3-1 に従来型蒸留塔を模式的に示す。いま回収部に注目し、リボイラー一段から任意の  $j$  段までをひとつのシステムバウンダリーと定義する。このシステムは、模式的に Figure 3-2 中の上図のように表すことができる。この非断熱プロセスは、Figure 3-2 下図に示すように便宜的に非断熱プロセスと断熱プロセスに分けて表現することができる。Figure 3-2 下図における非断熱プロセスにおける熱収支から Eq.(3-1) の関係を得る。なお、このようにプロセスを便宜上分けても物質収支は変わらないので、 $B' = B$  である。また、以下ではこのように表される仮想状態のエンタルピーを、仮想的エンタルピーと呼ぶこととする。また、本論文では、 $H$ - $xy$  線図上での状態を表現するのに、その状態の流量を表す記号の立体を用いる。

$$h'_B = h_B - \frac{Q_r}{B} \quad (3-1)$$

次に、このエンベロップにおける全物質収支と軽質成分に関する物質収支・熱収支を記述すると、それぞれ Eqs.(3-2), (3-3), (3-4) のようになる。

$$B = L_{j-1} - V_j \quad (3-2)$$

$$L_{j-1}x_{j-1} = V_jy_j + Bx_B \quad (3-3)$$

$$L_{j-1}h_{j-1} = V_jH_j + Bh'_B \quad (3-4)$$

Eq.(3-2)を他の2式に代入すると、Eq.(3-5)が得られる。

$$\frac{H_j - h'_B}{h_{j-1} - h'_B} = \frac{y_j - x_B}{x_{j-1} - x_B} \left( = \frac{L_{j-1}}{V_j} \right) \quad (3-5)$$

この関係から、仮想状態  $B'$  と  $j$  段のガスの状態  $V_j$  と  $j-1$  段の液の状態  $L_{j-1}$  は  $H$ - $xy$  線図上では同一直線上にのることが分かる。これにより、回収部における任意の続いた段の液とガス、および塔底の状態を示す関係、すなわち操作線が得られたこととなる。これに各段の液とガスの平衡関係を併せて考えることで、回収部各段の組成とエンタルピーの関係を示すことが可能となる (Figure 3-3)。

回収部と同様に濃縮部についても、コンデンサー周りのシステムバウンダリーについて、任意の  $i-1$  段における液と  $i$  段のガスと留出液の関係を以下のように表現することができる。

$$H'_D = h_D + \frac{Q_c}{D} \quad (3-6)$$

$$\frac{H_i - H'_D}{h_{i-1} - H'_D} = \frac{x_D - y_i}{x_D - x_{i-1}} \left( = \frac{L_{i-1}}{V_i} \right) \quad (3-7)$$

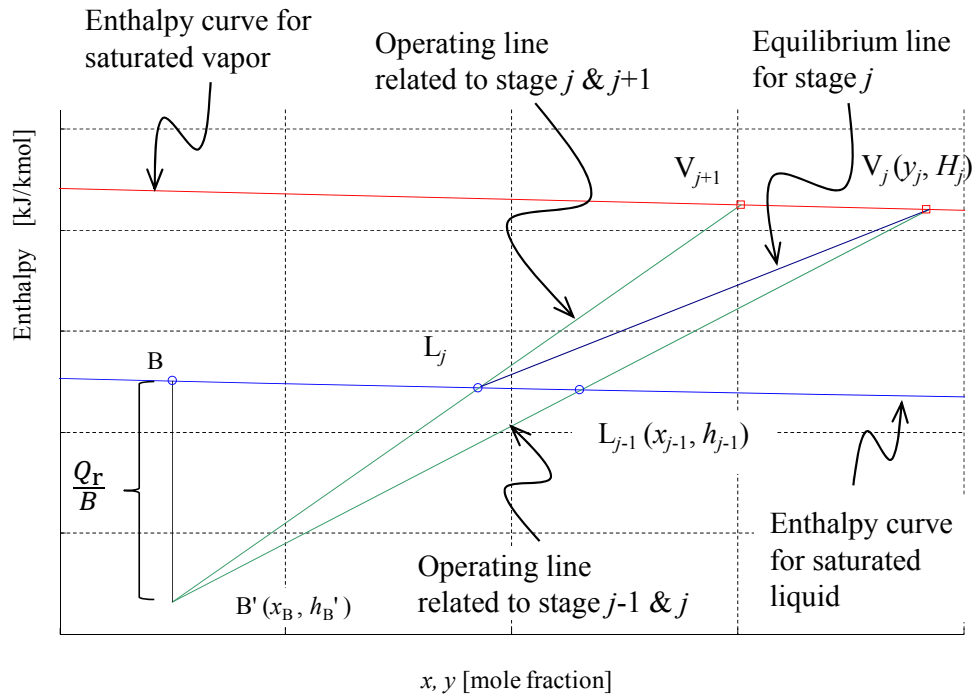


Fig. 3-3 Ponchon-Savarit 法  $H$ - $xy$  線図における操作線表現(回収部)

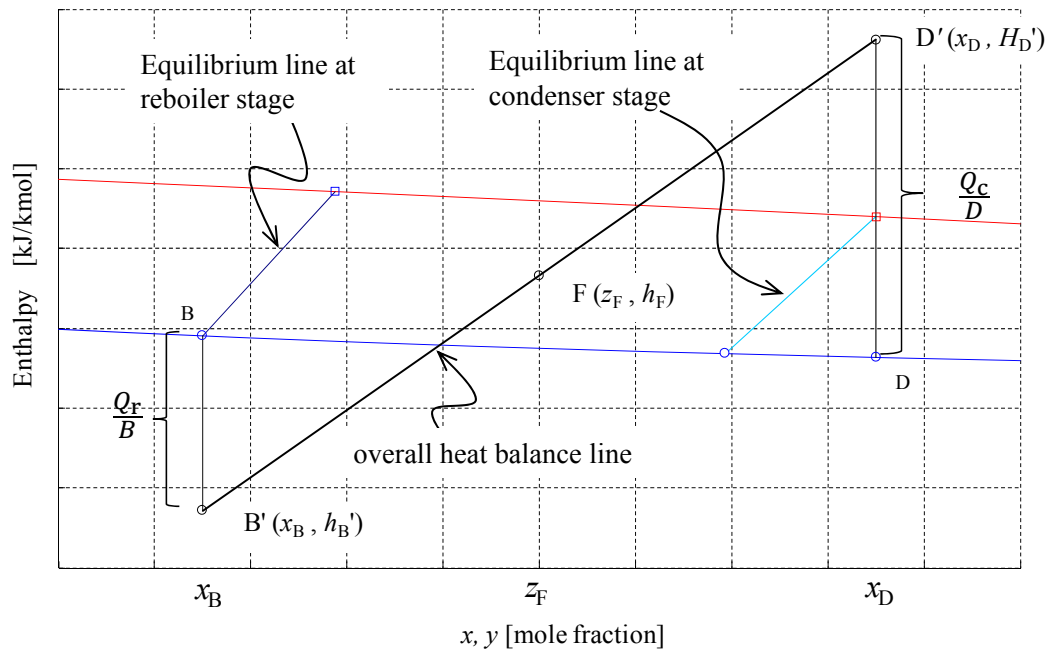


Fig. 3-4 Ponchon-Savarit 法  $H$ - $xy$  線図における全熱収支線表現

更に、濃縮部・回収部をまとめた系全体における物質収支を表す Eq.(3-8)と、軽質成分に関する系全体物質収支と熱収支を示す Eqs.(3-9), (3-10)から、全熱収支は Eq.(3-11)のように表現することができる。この式から、仮想状態 B', D' と原料を表す状態 F(  $z_F, h_F$  )の3点は  $H$ - $xy$  線図上で直線にのることが分かる(Figure 3-4 参照)。

$$F = D + B \quad (3-8)$$

$$Fz_F = Dx_D + Bx_B \quad (3-9)$$

$$Fh_F = DH'_D + Bh'_B \quad (3-10)$$

$$\frac{h_F - h'_B}{h'_D - h_F} = \frac{z_F - x_B}{x_D - z_F} \quad \left( = \frac{D}{B} \right) \quad (3-11)$$

### 3-2-2 改良 Ponchon-Savarit 線図と $T$ - $xy$ 線図を用いた設計方法論の概要

まず、提案する設計方法を把握し易くするため、おおよその設計のながれを述べ、続く項でそれらの理論的な背景などを詳述する。なお、設計にあたっては、原料条件（圧力、温度、組成  $z_F$ 、流量  $F$ ）、分離スペック（留出濃度  $x_D$  ( $=y_D$ ), 缶出濃度  $x_B$ ), 及び回収部の操作圧力  $P_S$  は設計条件として与えられているものとする。また、ここでは検討対象系を2成分系とし、軽質成分のモル分率に基づき成分を記述するものとする。

#### Step 1: 省エネルギー性能の設定

従来型蒸留操作に関する蒸留計算を行い、基準となる理論段数とリボイラー負荷を算定する。その結果を基に、HIDiC 化する際の濃縮部と回収部の合計理論段数  $N_T$ , リボイラー負荷  $Q_R$ , 圧縮機動力  $W_S$  を設定する。サイド熱交換は全段で行わないことを想定し、サイド熱交換器の数  $N_E$  も設定する。

提案する手法の大きな特徴は、与えられたプロセス条件に対して、HIDiC の検討を実施する前に  $N_T$ ,  $Q_R$ ,  $W_S$  及び  $N_E$  を与え、分離条件を満たすサイド熱交換を検討することである。 $Q_R$  と  $W_S$  を前もって与えるため、目標とする省エネルギー性能を設定することとなり、これを満たすスキーム・装置の実現性を検討できる。

#### Step 2: 回収部の理想的なサイド熱交換条件

最初に段数を無限段と仮定し、回収部の各段に与えるべき最小熱負荷を算出する。得られた任意の段の液組成と仮想的エンタルピーの関係を隣り合う段で結んだ関係を可逆蒸留操

作線 (reversible distillation curve, 以下 RDC) と呼ぶ。この RDC は本論文にて新たに提案するものであり、RDC をどのように描くかは次項以降で詳述する。

#### Step 3 : 回収部におけるサイド熱交換の与え方の決定

回収部 RDC の形状を考慮して、回収部においてサイド熱交換を行う組成および熱負荷を決定する。これをもとに回収部における必要理論段数を算定する。得られた段数が前もって決められていた段数と合致しない場合、サイド熱交換を行う組成 (段) の位置や与える熱負荷を調整する。

#### Step 4 : 濃縮部の理想的なサイド熱交換条件

まず、Step 3 までで決定された条件から算出される圧縮機が処理する流量と、Step 1 で与えられた圧縮機動力から濃縮部の操作圧力を算出する。そして、濃縮部に与えられる段数を無限段と仮定して、濃縮部の各段に与えるべき最小熱負荷を算出する。得られた任意の段のガス組成と仮想的エンタルピーの関係を結んだ関係が濃縮部における RDC となる。

#### Step 5 : 濃縮部におけるサイド熱交換の与え方の決定

濃縮部 RDC の形状を考慮して、濃縮部においてサイド熱交換を行う組成を決定する。それぞれのサイド熱交換量に関しては、既に組み合わせる相手となる回収部のサイド熱交換器の熱負荷が決定されているためこれに従う。

#### Step 6 : サイド熱交換器の伝熱面積の算出

各サイド熱交換器に与えられた熱交換量と、 $T$ - $xy$  線図を統合することにより得られたそれぞれの温度差を用いて、必要伝熱面積を算出する。伝熱面積が想定する値に収まらない場合は、Step 1 で算出した  $Q_r$  と  $W_s$  を再設定する。すなわち、省エネルギー性能のターゲットを設定し直す。伝熱面積が適切な値となったら、得られた条件を初期条件としてプロセスシミュレーションによる厳密計算を行い、提案する図解法により得られた結果の正当性を確認する。

### 3-2-3 改良 Ponchon-Savarit 線図と $T$ - $xy$ 線図を用いた設計方法論の詳細

本項では、前項の設計手法概要では十分解説できなかった Step 2 - 6 について詳細説明を行う。

#### 3-2-3-1 回収部の理想的なサイド熱交換量条件

まず、前もって決定している回収部操作圧力における、沸点および凝縮点相当のエンタルピー曲

線を気液平衡線と共に  $H$ - $xy$  線図に与える(Figure 3-5 参照). 回収部の任意の段  $j$  における物質収支, 熱収支は, 次式のように表すことができる.

$$L_{S,j-1} = V_{S,j} + B \quad (3-12)$$

$$L_{S,j-1}x_{S,j-1} = V_{S,j}y_{S,j} + Bx_B \quad (3-13)$$

$$L_{S,j-1}h_{S,j-1} + \sum_{k=j}^{N_S} q_k + Q_r = V_{S,j}H_{S,j} + Bh_B \quad (3-14)$$

ここで  $L_{S,j}$  および  $V_{S,j}$  は回収部  $j$  段からでる液・ガスの流量を示し,  $B$  は缶出液の流量を示す. また,  $x_{S,j}$  および  $y_{S,j}$  は同段の液・ガスの軽質成分のモル分率を,  $h_{S,j}$  および  $H_{S,j}$  は同段の液・気相のエンタルピーを示す. さらに,  $q_k$  は  $k$  段にサイド熱交換により供給される熱量を示す. 回収部の段数は上から数えるものとし, 1 段が原料供給段で  $N_S$  段がリボイラー段となる. Eqs. (3-12)–(3-14) から次の関係が導出される.

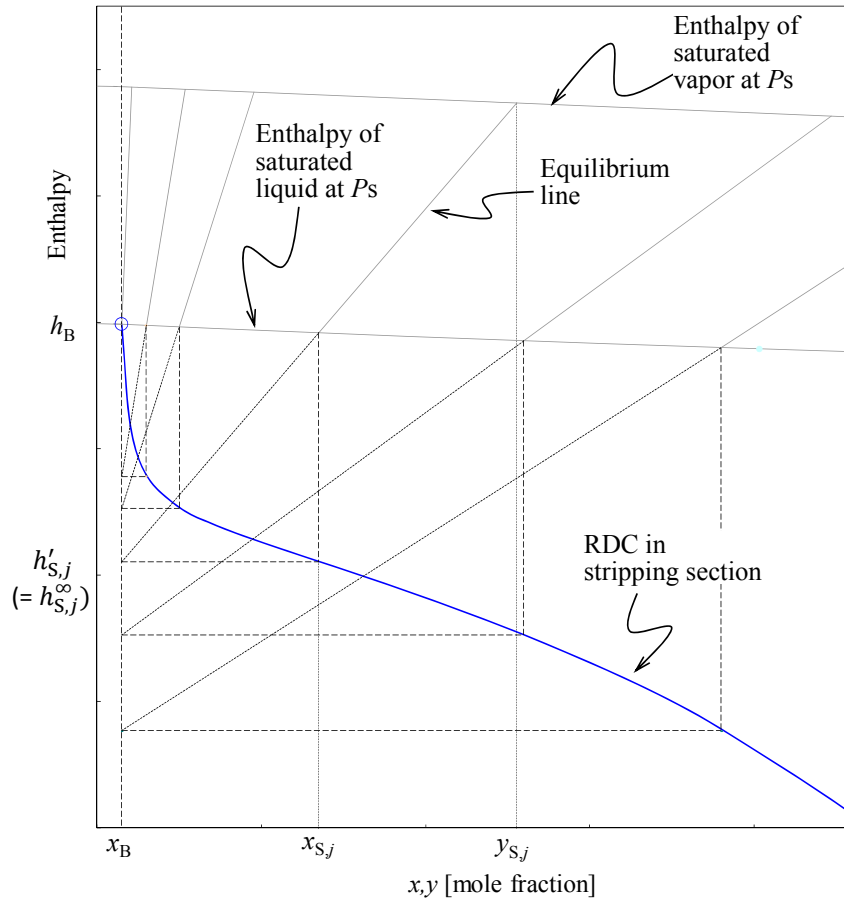


Fig. 3-5 可逆蒸留線(RDC)の  $H$ - $xy$  線図上における表現

$$\frac{x_{S,j-1}-x_B}{y_{S,j}-x_B} = \frac{h_{S,j-1}-h'_{S,j}}{H_{S,j}-h'_{S,j}} \left( = \frac{v_{S,j}}{L_{S,j-1}} \right) \quad (3-15)$$

ただし、 $h'_{S,j}$  は次式で表される仮想的なエンタルピーである。

$$h'_{S,j} = h_B - \left( \sum_{k=j}^{N_S} q_k + Q_r \right) / B \quad (3-16)$$

Eq.(3-16)において、 $h_B - h'_{S,j}$  は  $j$  段からリボイラー段の間でリボイラー負荷を含む熱負荷の合計を缶出流量で除した、缶出液単位モル流量当たりの供給熱量を表している。塔が無限段を有し( $N_S = \infty$ )、可逆蒸留操作となるように各段に熱が供給されるとき、 $x_{S,j-1} = x_{S,j}$ 、 $h_{S,j-1} = h_{S,j}$ 、 $L_{S,j-1} = L_{S,j}$  と考えることができる。この状態では、操作線と気液平衡線は重なり、気相組成  $y_{S,j}$  から引いた気液平衡線を延長すると、Figure 3-5 に示すように( $x_B, h_{S,j}^\infty$ )に達する。ここで、 $h_{S,j}^\infty$  は  $h'_{S,j}$  の可逆操作の場合の値を表す。

可逆蒸留操作を仮定すると、任意の液相組成  $x_S$  に対する仮想的エンタルピー  $h_S^\infty$  は、Eq.(3-15)から算出することができる。 $H$ - $xy$  線図上で、このようにして算出される( $x_S, h_S^\infty$ )をプロットして得られる線は、回収部における可逆操作の状態を表すもので、 $h_S^\infty = f_S^\infty(x_S)$  として表現することができる。以下では回収部の可逆蒸留線(reversible distillation curve, RDC)と呼ぶこととする。また、 $h_B - h_S^\infty$  は、 $h_S^\infty$  に相当する液組成  $x_S$  から缶出製品  $x_B$  を得るために必要な最小供給熱量を示すものとなる。

### 3-2-3-2 回収部におけるサイド熱交換の与え方の決定

塔が有限段で各段に供給される熱量が与えられると、各段の液組成と仮想的エンタルピーの関係( $x_S, h'_{S,j}$ )は、Eqs.(3-15)、(3-16)を用いて算出することができる。連続した( $x_S, h'_{S,j}$ )を回収部のすべての段にわたりつないだ線を、回収部における操作軌跡線(operating locus)と呼ぶこととする。操作軌跡線は物質移動の推進力を得るため、 $H$ - $xy$  線図ではどんな組成においても RDC よりも下に位置していなければならない。

操作軌跡線を決定すれば、必要となる理論段数や各段に供給する熱量を算出することができる。 $H$ - $xy$  線図上で、RDC と操作軌跡線の距離が小さくなると、その組成領域では必要理論段数が増大する。したがって、本研究では、 $H$ - $xy$  線図上の RDC と操作軌跡線との縦方向の距離が、どんな組成でもほぼ同一となるよう、操作軌跡線を与えるものとした。そのような操作軌跡線を描くためには、RDC を下方向に移動するように与えれば良い。このようにして得られる曲線を、シフト可逆蒸



留線(shifted reversible distillation curve, S-RDC)と呼ぶこととする。Figure 3-6 に、このような考え方、すなわち次式にて表される S-RDC を示した。

$$h'_S = f_S^\infty(x_S) - \Delta h \quad (3-17)$$

ここで  $\Delta h$  は、回収部に可逆蒸留操作で与える熱量から余計に加える熱量を示している。これは、各段における不可逆性に相当するものである。

S-RDC が与えられると、Eqs.(3-15)–(3-17)，および気液平衡関係を用いてリボイラー一段から原料段まで組成が逐次計算され、回収部における必要理論段数が算定される。得られた段数が前もって決めていた段数と異なる場合、 $\Delta h$  の大きさを調整することで段数を設定のとおりにすることができる。

前章にて、全段にわたる内部熱交換を行うよりも、限られた適切な段間でサイド熱交換を行う方が優れた省エネルギー性能を得られることを示しており、ここではサイド熱交換が幾つかの段のみで行われることを想定した。熱が供給されない段では、操作軌跡線は  $H$ - $xy$  線図上で水平な線として与えられる。例として、4 つのサイド熱交換器を設置する場合の操作軌跡線を Figure 3-6 に示した。

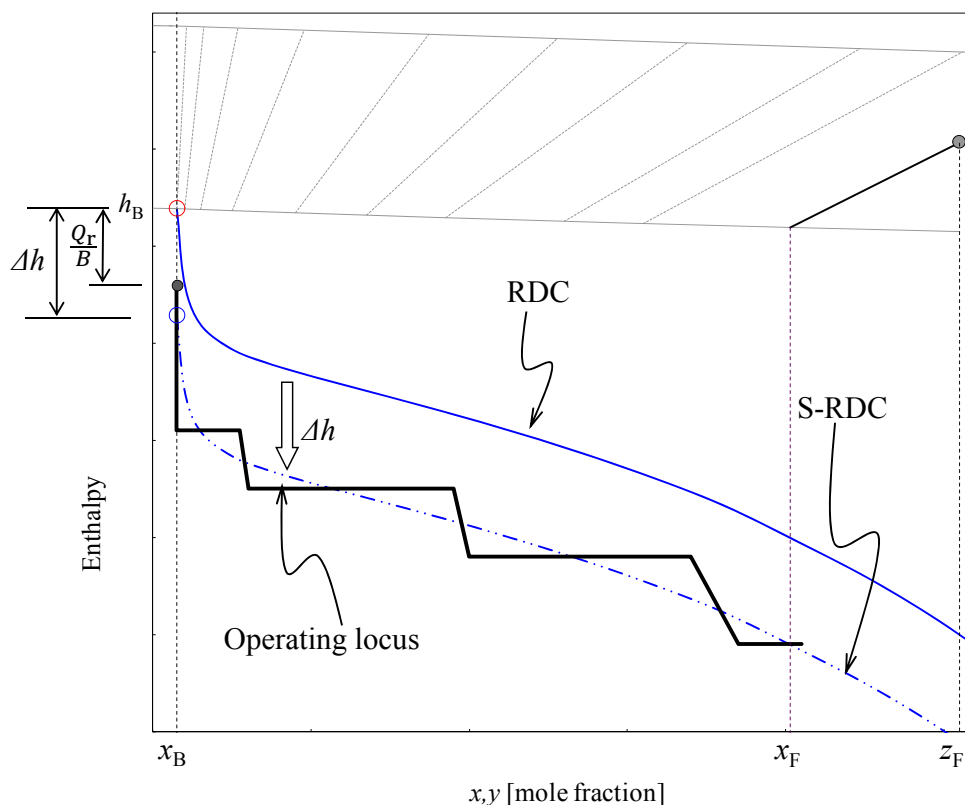


Fig. 3-6 シフト可逆蒸留線(S-RDC)と操作軌跡線

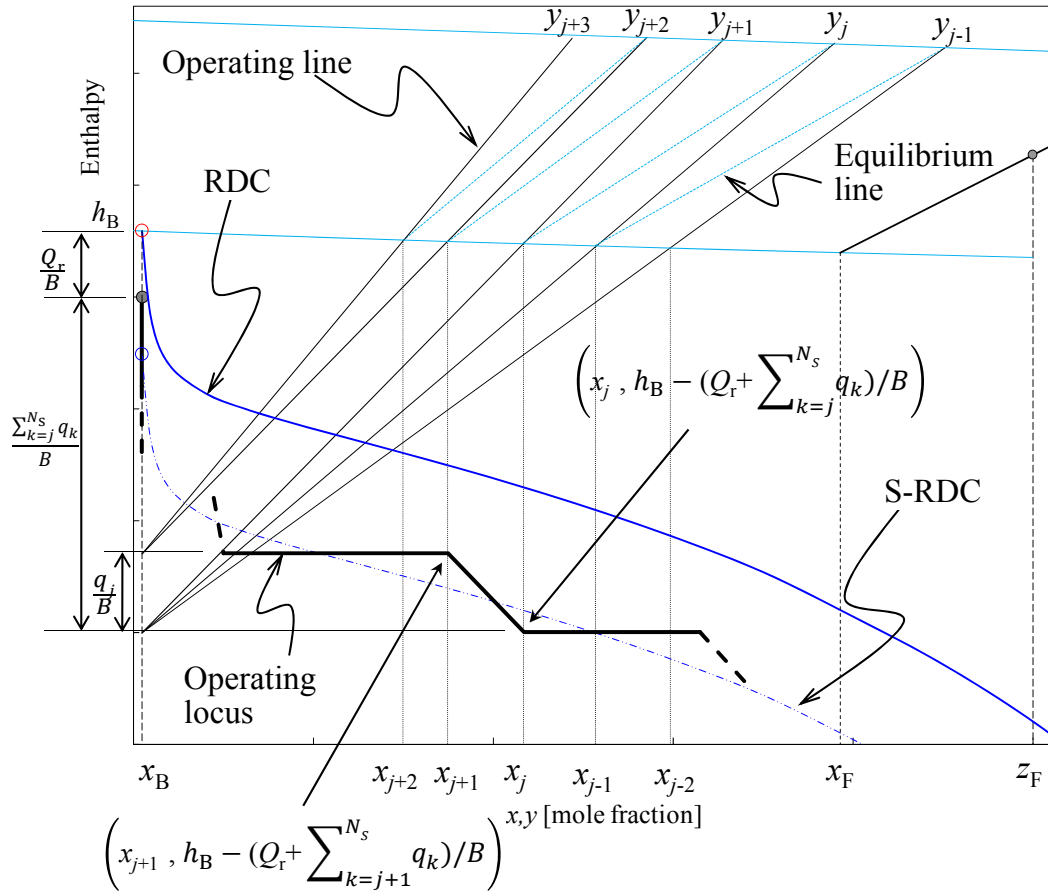


Fig. 3-7 サイド熱交換器周辺の操作軌跡線と操作線

塔内挙動が S-RDC の塔内挙動と類似するよう、操作軌跡線を  $H$ - $xy$  線図上で S-RDC に重なるように与える。リボイラー負荷が  $Q_r$  として与えられるとき、操作軌跡線の始点は  $(x_B, h_B - Q_r/B)$  となり、原料組成がフラッシュした後の液相組成である  $x_F$  まで描かれる。また、操作軌跡線は、S-RDC と類似した塔内挙動を示すように与えられるが、両者の始点は必ずしも一致する必要はない。

このようにして得られる操作軌跡線から、操作線を描くことで（あるいは、Eqs.(3-15), (3-16) と気液平衡関係から算出することで）回収部理論段数を得ることができる。サイド熱交換を行う段前後の操作線の様子を **Figure 3-7** に示す。ここでは、 $j$  段のサイド熱交換器にて  $q_j$  の熱量を与えた場合の状態を示している。サイド熱交換を与える際には、Eq.(3-16) にて表現されるように、縦軸上の変化量は熱交換量を缶出液流量で除した  $q/B$  となる。操作軌跡線は、得られる理論段数が前もって設定した段数となるまで、S-RDC と類似した塔内挙動となる範囲内で、熱を与える組成やその大きさを繰り返し調整する。

以上のように可逆蒸留線、シフト可逆蒸留線と操作軌跡線を  $H$ - $xy$  線図上に与えることで、回収部においてサイド熱交換器を設置する段（組成）、および各サイド熱交換器に与える熱負荷を、与えられた段数のもとで決定することができる。

### 3-2-3-3 濃縮部の理想的なサイド熱交換量条件

本設計手法では、得られる省エネルギー性を設定した検討を行うことができよう、濃縮部操作圧力ではなく圧縮機動力を前もって与えている。省エネルギー性を設定することで、さまざまなプロセス条件を比較検討することが可能となる。例えば、複数の内部熱交換条件（内部熱交換段数、各熱交換量、熱交換段の組合せ、など）に対して、同じ省エネルギー性能を得るための条件を得ることができる。

一方で、 $H$ - $xy$  線図上で  $HIDiC$  を表現するには、濃縮部についても  $RDC$ ,  $S$ - $RDC$  および操作線を与える必要があるため、その基準となる気液平衡組成と平衡状態のエンタルピーを得るのに、濃縮部操作圧力を決定する必要がある。

圧縮機動力と圧力は、Eq.(3-18)に表す関係で示される。

$$W_s = \frac{V_{in}}{\eta} \frac{\gamma}{\gamma-1} RT_{in} \left[ \left( \frac{P_{out}}{P_{in}} \right)^{\frac{\gamma-1}{\gamma}} - 1 \right] \quad (3-18)$$

ここで、 $V_{in}$  は圧縮機で処理するモル流量、 $T_{in}$  は圧縮機入口におけるガス温度、 $\gamma$  ( $=C_p/C_v$ ) は圧縮機入口における比熱比を示す。また、 $\eta$  は圧縮機の断熱効率、 $P_{in}$  と  $P_{out}$  は圧縮機入口と出口それぞれの圧力を示す。本検討では塔の圧力損失を無視しているため、 $P_{in}$  と  $P_{out}$  はそれぞれ回収部操作圧力  $P_S$ 、濃縮部操作圧力  $P_R$  に相当し、 $P_S (=P_{in})$  は検討の前提条件として与えられている。また、圧縮機動力  $W_s$  はいかなる機械損失も含んでいない。

Eq.(3-18)から  $P_{out} (=P_R)$  を得るためには、 $V_{in}$  を与える必要がある。このため、原料供給段まわりの物質収支に注目した(Figure 3-8)。圧縮機に供給されるガス流量  $V_{in}$  は、原料が回収部操作圧力の下でフラッシュした際のガス流量  $F_V$ 、回収部からのガス流量  $V_{S,1}$ 、そして濃縮部最下段( $m$  段とする)の液が回収部操作圧力へ減圧される際に発生するガス流量  $\hat{V}_{R,m}$  の合計流量である。濃縮部最下段の液が減圧した後の液相組成  $\hat{x}_{R,m}$  が、原料がフラッシュした後の液相組成  $x_F$  と一致すると仮定すると、回収部からのガス流量  $V_{S,1}$  は、Eqs.(3-12)–(3-14)から算出することができる。また、 $F_V$  も原料条件と回収部操作圧力が前提条件として与えられるため、容易に算出できる。更に  $P_{out} (=P_R)$  を仮定すれば、濃縮部最下段の液が回収部操作圧力に減圧した結果発生するガス流量  $\hat{V}_{R,m}$  を算出



を特定でき、そのうえでそのフラッシュ計算で得られる気液比率を用いて、先に求められている  $\hat{L}_{R,m}$  を満たす  $L_{R,m}$ ,  $\hat{V}_{R,m}$  が算定できる。

このようにして算出された  $\hat{V}_{R,m}$  を用いて、圧縮機入口流量  $V_{in}$  が得られる。そして、Eq.(3-18)から圧縮機出口圧力  $P_{out}$ , すなわち濃縮部操作圧力  $P_r$  が算出される。ここで  $\hat{V}_{R,m}$  を算出するため  $P_{out}$  を仮定しているが、Eq.(3-18)において  $P_{out}$  に対する  $\hat{V}_{R,m}$  の寄与は限定的であり、必ずしも得られた  $P_{out}$  に対して、 $\hat{V}_{R,m}$  を再度計算するという繰り返し収束計算を行う必要はない。

このようにして得られた濃縮部操作圧力における沸点、および凝縮点相当のエンタルピー曲線を  $H$ - $xy$  線図に描くことができる。これらのエンタルピー曲線は、操作圧力が回収部より高いことから回収部のエンタルピー曲線よりも大きな値となる。更に、回収部と同じ要領で、濃縮部における RDC を得ることができる。

### 3-2-3-4 濃縮部におけるサイド熱交換の与え方の決定

濃縮部における S-RDC は、回収部の S-RDC のようにその位置を調整することはできず、一意的に与えられる。この理由を全熱収支から説明する。HIDiC の全熱収支は次のように表すことができる。

$$Fh_F + Ws + Q_r = Dh_D + Bh_B + Q_c \quad (3-21)$$

ここで、 $F, D, B$  はそれぞれ原料、留出、缶出の流量を表し、 $h_F, h_D, h_B$  はそれぞれ原料、留出液、缶出液のエンタルピーを表す。本研究で提案している設計手法では、リボイラー負荷  $Q_r$  と圧縮機動力  $Ws$  は前もって決められるため、Eq.(3-21)によりコンデンサー負荷  $Q_c$  を得ることができる。

ここで、Eq.(3-21)は次式のように変形することができる。

$$Fh_F^0 = Dh_D^0 + Bh_B^0 \quad (3-22a)$$

$$h_F^0 = h_F + Ws/F \quad (3-22b)$$

$$h_D^0 = h_D + Q_c/D \quad (3-22c)$$

$$h_B^0 = h_B - Q_r/B \quad (3-22d)$$

Eqs.(3-22a)–(3-22d)および全物質収支を表す  $Fz_F = Dx_D + Bx_B$ , から次の3つの状態 ( $z_F, h_F^0$ ), ( $x_D, h_D^0$ ), ( $x_B, h_B^0$ ) は  $H$ - $xy$  線図上では直線上にあることがわかる。

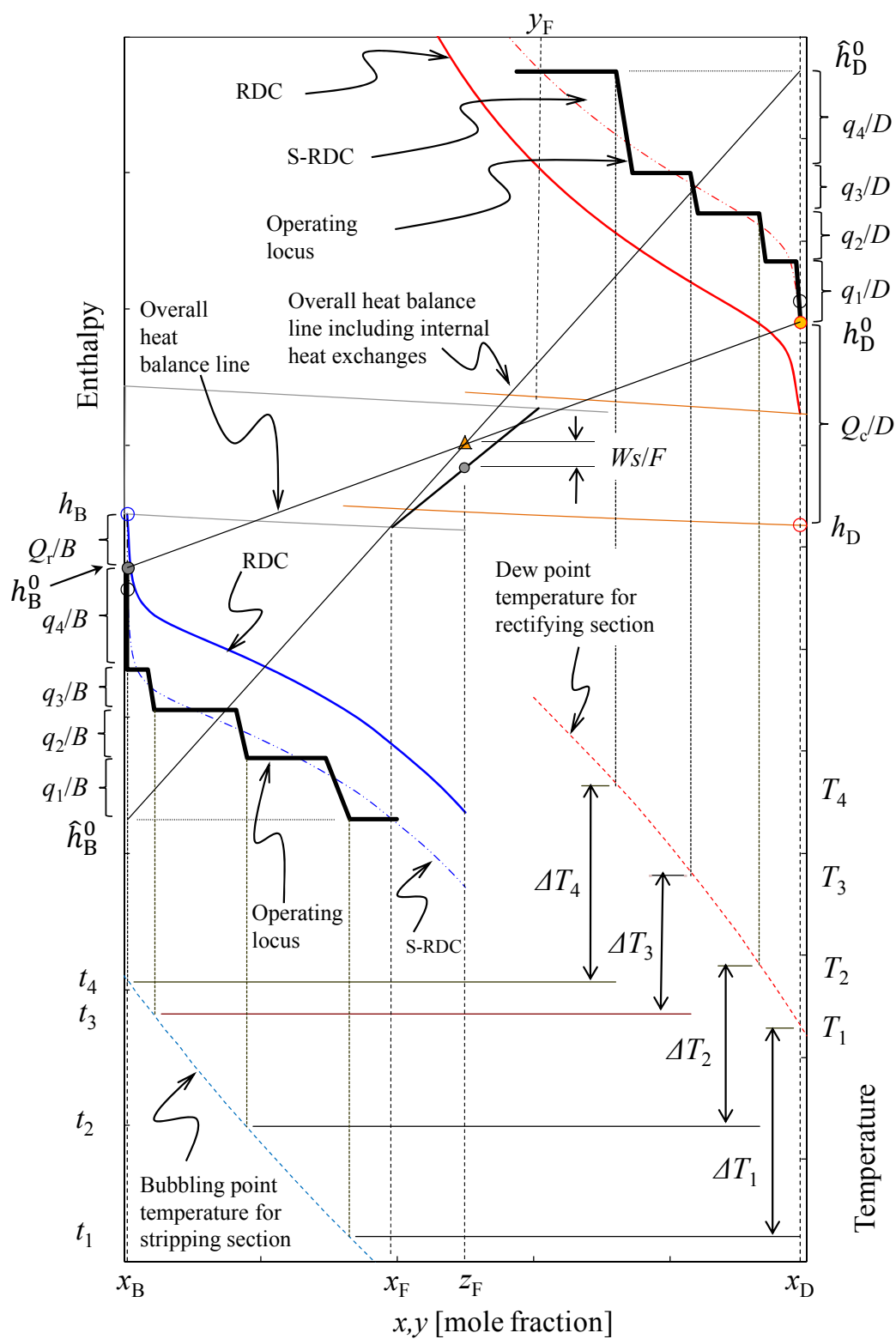
同様に、サイド熱交換量の合計を全熱収支に考慮しても、熱収支は依然として維持される。これは、 $Q_r$  と  $Q_c$  の代わりにそれぞれ  $Q_r + \Sigma q_k$  と  $Q_c + \Sigma q_k$  を用いても、Eqs.(3-21), (3-22a)–(3-22d)は成立するからである。すなわち、サイド熱交換量を考慮した全熱収支線は、 $H$ - $xy$  線図上で  $\hat{h}_D^0 = h_D + (Q_c/D) + (\Sigma q_k/D)$ ,  $\hat{h}_B^0 = h_B - (Q_r/B) - (\Sigma q_k/B)$  で表される  $\hat{h}_D^0$ ,  $\hat{h}_B^0$  を用いて ( $z_F$ ,  $h_F^0$ ), ( $x_D$ ,  $\hat{h}_D^0$ ), ( $x_B$ ,  $\hat{h}_B^0$ ) を通過する直線として表される (Figure 3-9 参照)。一方で、回収部の S-RDC が ( $x_F$ ,  $\hat{h}_B^0$ ) を通過するように与えられたように、濃縮部の S-RDC は ( $y_F$ ,  $\hat{h}_D^0$ ) を通過するように与えられる。ただし、 $x_F$ ,  $y_F$  は、原料がフラッシュした際の液、気相それぞれの軽質成分のモル分率を示す。したがって、回収部におけるサイド熱交換量の与え方が決まると、濃縮部における S-RDC の位置は一意的に決定される。

濃縮部の S-RDC を与えたら、S-RDC に基づく理論段数を算出することができる。得られた理論段数が、前もって設定していた値と合致しない場合は、回収部の S-RDC からその位置を再設定して、回収部と濃縮部の合計理論段数が設定値となるよう調整する。

Figure 3-9 は4つのサイド熱交換器を有する HIDiC での例で、それぞれ位置が高いところから  $q_1$ ,  $q_2$ ,  $q_3$ ,  $q_4$  の熱負荷を与えた場合を示したものである。これらの回収部に関する情報と濃縮部の S-RDC から、濃縮部の操作軌跡線を描く。回収部の場合同様、濃縮部操作軌跡線は濃縮部 S-RDC に重なるように与えるが、回収部のサイド熱交換の与え方を検討した際に各熱交換器負荷は決められているため、濃縮部操作軌跡線を与える際はエンタルピー変化を起こす組成（段）のみ調整可能となる。ただし、 $H$ - $xy$  線図上では、サイド熱交換器負荷  $q_1$ ,  $q_2$ ,  $q_3$ ,  $q_4$  は、回収部の  $x = x_B$  上では  $q_1/B$ ,  $q_2/B$ ,  $q_3/B$ ,  $q_4/B$  として表現されるが、濃縮部の  $x = x_D$  上では  $q_1/D$ ,  $q_2/D$ ,  $q_3/D$ ,  $q_4/D$  として表現される。

このようにして得られた濃縮部操作軌跡線に基づき、濃縮部の必要理論段数を算出する。得られた回収部と濃縮部の合計段数が設定している値と異なる場合、サイド熱交換を行う位置を変更することで調整する。ただし、上述したように濃縮部と回収部の S-RDC が独立に設定できないことから、理論段数は回収部と濃縮部の合計として与える。比較する従来型蒸留操作における回収部と濃縮部の各段数と HIDiC で得られるそれぞれのセクションの段数は、必ずしも一致しない。

以上のように回収部同様、濃縮部にも可逆蒸留線、シフト可逆蒸留線と操作軌跡線を  $H$ - $xy$  線図上に与えることで、与えられた段数のもとで濃縮部でサイド熱交換器を設置する段（組成）を決定することができる。既に回収部における各サイド熱交換器の設置段（組成）が決まっているため、各サイド熱交換器を設置する段の組合せを決定することができる。



**Fig. 3-9** 濃縮部 S-RDC の与え方,  $T$ - $xy$  線図の統合  
およびサイド熱交換の決定手法

### 3-2-3-5 サイド熱交換器の伝熱面積

HIDiC を設計するには、サイド熱交換器における温度差が重要な因子となる。これは、サイド熱交換器のコストに直接影響を及ぼすからである。サイド熱交換器では、濃縮部側温度は回収部側温度に対してある程度高く設定されなければならない。適切な熱交換段の選定が行われないと、温度差が極端に小さくなって非常に大きな伝熱面積が必要になったり、温度差が負の値になったりしてしまう。このため、塔内の温度に関する情報は不可欠である。そこで、Figure 3-9 に示すように、 $H$ - $xy$  線図に  $T$ - $xy$  線図を重ねて示し、任意の組成に対応した温度情報を缶出組成から留出組成まで得ることができるようにした。

これまでの検討で、各サイド熱交換器の回収部・濃縮部における設置段（組成）と熱交換負荷を決定できている。Figure 3-9 には、熱負荷が  $q_1, q_2, q_3, q_4$  のサイド熱交換器が与えられているが、 $T$ - $xy$  線図を  $H$ - $xy$  線図と統合したことで、それぞれの設置段の組成に相当する温度が、回収部で  $t_1, t_2, t_3, t_4$ 、濃縮部で  $T_1, T_2, T_3, T_4$  のように得ることができる。これにより各サイド熱交換器における温度差  $\Delta T_k$  を得ることができる。さらに、適切な総括伝熱係数を設定することで、 $q_k$  と  $\Delta T_k$  から伝熱面積  $A_k$  を算出できる。得られた個々のサイド熱交換器の伝熱面積、あるいはそれらの合計面積が想定している範囲に入らない場合は、濃縮部のサイド熱交換器設置組成（段）を操作軌跡線が S-RDC と重なり、合計理論段数が設定値となる範囲で調整する。それでも設定の通りにならない場合は、省エネルギー性能のターゲットとして与えた  $Q_r$  と  $W_s$  を変更し、最初のステップから再検討する。このように、 $T$ - $xy$  線図と  $H$ - $xy$  線図を統合することで、組成ピンチと温度差を同時に考慮しながら、サイド熱交換のペアリングを検討することができるようになる。

以上で得られた結果をもとに、最終的にプロセスシミュレーターにて厳密計算を行えば正確な計算結果を得ることができる。

## 3-3 設計手法の検証

前節で提案した手法に関する最適性に関しては、十分に証明されてはいないものの、 $H$ - $xy$  線図に RDC, S-RDC と操作軌跡線を付加し、 $T$ - $xy$  線図と統合することで、適切なサイド熱交換を行う段の位置、サイド熱交換を行う段の組合せ方、あるいは熱交換負荷を決定できることを示した。本節では、提案する手法で得られる結果と数理最適化により得られた結果を比較し、提案する手法の有効性を確認した。



また、HIDiC の適用を検討するのは概念設計段階であるが、この段階では理論段数、省エネルギー性（リボイラー負荷、圧縮機動力）、サイド熱交換器数、サイド熱交換器の伝熱面積などに関する様々な条件に対し、速やかに計算結果を比較検討する必要がある。本節では、一定の省エネルギー性のもとでサイド熱交換器数を変えた検討を行い、提案する設計手法が概念設計段階で活用できるのか検証し、その有用性を確認した。

検討対象のプロセス条件は、問題を極力簡略にし、問題の本質を明確にできるよう 2 成分系を想定し、製品純度が低く分離条件が緩いケース 1（前章と同一条件）と、同じ 2 成分系だが高い製品純度を要求するケース 2 の 2 つのケースで検討を行った（Table 3-1 参照）。ケース 1 については、前章で数値最適化の結果を得ており、これと比較することで、本章にて提案した手法が類似した結果を得られるか確認した。ケース 2 では、提案した手法で一定の省エネルギー性能のもとで、異なるサイド熱交換器数での設計を行ない、概念設計段階で活用できるかを検証した。

図解的なアプローチで得られた結果を、厳密計算を行うプロセスシミュレーションの入力条件に用いるが、プロセスシミュレーションは定常平衡段シミュレーターであるインベンシス社の Pro/II<sup>®</sup>

**Table 3-1** 検討プロセス条件

		Case 1	Case 2
Feed rate	[kmol/s]	1/36	1/36
Feed composition	[mol%]		
Benzene		50	50
Toluene		50	50
Liquid molar fraction in feed	[ - ]	0.5	0.5
Separation specifications			
Benzene in distillate	[mol%]	85.0	99.9
Toluene in bottoms	[mol%]	85.0	99.9
Number of theoretical stages			
Rectifying section (incl. condenser)	[ - ]	7	15
Stripping section (incl. reboiler)	[ - ]	7	18
Overall heat transfer coefficient	[kW/(m <sup>2</sup> K)]	0.5	0.5
Compressor shaft power	[kW]	variable	variable
Compressor adiabatic efficiency	[%]	75	75
Pressure drop			
Theoretical stage	[kPa]	0	0
Condenser	[kPa]	0	0
Reboiler	[kPa]	0	0
Pressure			
Rectifying section	[kPa]	variable	variable
Stripping section	[kPa]	101.3	101.3

を用いて行った。また、気液平衡推算法には Soave-Redlich-Kwong 式を用いた。

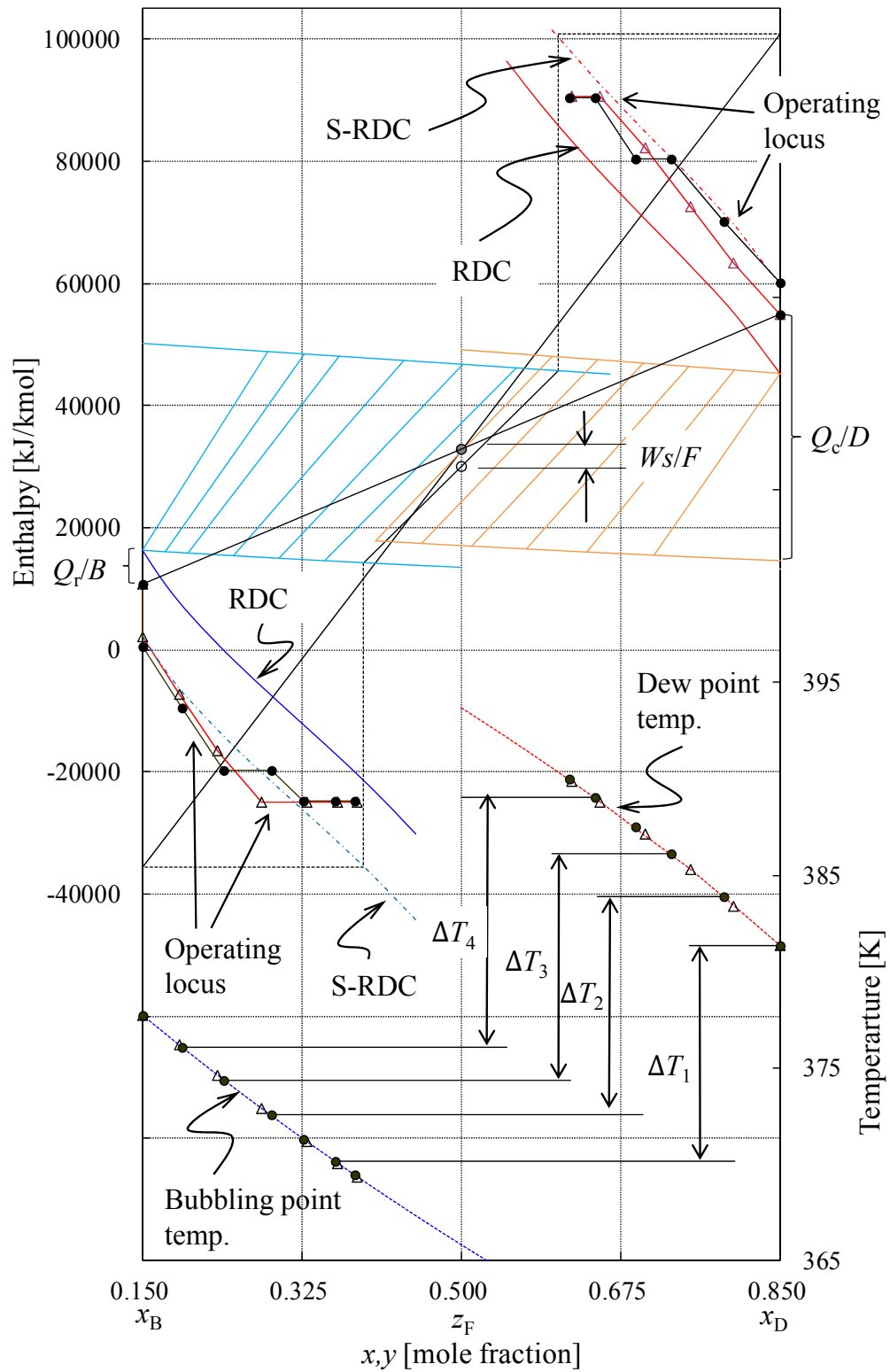
### 3-3-1 提案する HiDiC 設計方法の有効性

Table 3-1 に示したケース 1 の条件で、操作圧力を 101.3 kPa とした場合の従来型蒸留におけるリボイラー負荷は 547 kW となる。これは最小還流比の状態に対して 1.05 倍に相当し、通常の蒸留塔設計において省エネルギーに重心を置いた設計となっている。また、ケース 1 の原料供給段は最適段に供給されている。

いま、ケース 1 に対して HiDiC 化の検討を行う。省エネルギー性のターゲットとして、リボイラー負荷  $Q_r$  を 77 kW、圧縮機動力  $W_s$  を 80 kW に設定する。また、サイド熱交換器の数  $N_E$  は 4 とする。この省エネルギー性能に関する設定は、前章の数値最適化した状態と同一であり、動力を与えるための電気を発電効率 36.6 % にて一次エネルギーに変換すると、消費エネルギーは 296 kW となり 46% の消費エネルギー削減に相当する。

このように設定した HiDiC に対して、提案する設計手法で得られたサイド熱交換に関する情報を用いて厳密計算した結果を、 $H$ - $xy$ 、 $T$ - $xy$  線図に示すと Figure 3-10 のとおりとなる。また、提案する手法で得られたサイド熱交換の組合せと熱負荷を Figure 3-11 にプロセスフローのかたちで示した。Figure 3-10 上には、提案する手法の結果とあわせて、比較として前章で得られた数値最適化の結果での操作軌跡線と温度を  $\Delta$  にて示した。提案する手法と数値最適化で得られる操作圧力はほぼ一致するため、両手法で得られる回収部の沸点温度曲線、あるいは濃縮部の凝縮点温度曲線は、図上では重複している。また、Table 3-2 にも両者の性能比較のため、濃縮部操作圧力、サイド熱交換の組合せ、各熱交換器の熱負荷、入口温度差、伝熱面積について示した。Figure 3-11 と Table 3-2 に示されるように、提案した手法で得られるサイド熱交換の設置位置は前章の結果と少し異なり、途中で熱交換を行わない構造となった。サイド熱交換器の合計伝熱面積は、提案する手法と数値最適化でそれぞれ 90.3 m<sup>2</sup> と 86.2 m<sup>2</sup> であり、その差は数値最適化結果を基準として約 +5 % で、装置全体のコストとしては無視できる差異である。また、濃縮部操作圧力はほぼ同じ値となっている。

以上から、両者の設計は良好に一致しており、提案する手法はターゲットとする省エネルギー性能に対して、数理的に最適化された状態とほぼ同じ状態を得ることができるといえる。なお、Table 3-2 中の温度差には各サイド熱交換器の入口温度差を記載しているが、伝熱面積を算出する際には、プロセスシミュレーターを用いた厳密計算の結果である平均対数温度差を用いている。また、サイド熱交換器の設置段の組合せを示す  $S_j$ - $R_i$  は、回収部  $j$  段と濃縮部  $i$  段で熱交換をおこなうサイド熱交換器を意味し、入口温度差は、回収部の  $j-1$  段から流入してくる液相の温度と濃縮部の  $i+1$  段か



- Operating point at each stage for HIDiC as per proposed methodology
- △ Operating point at each stage for HIDiC as per optimization

**Fig. 3-10**  $H$ - $xy$  &  $T$ - $xy$  線図に示す提案する設計手法による検討結果(ケース 1)

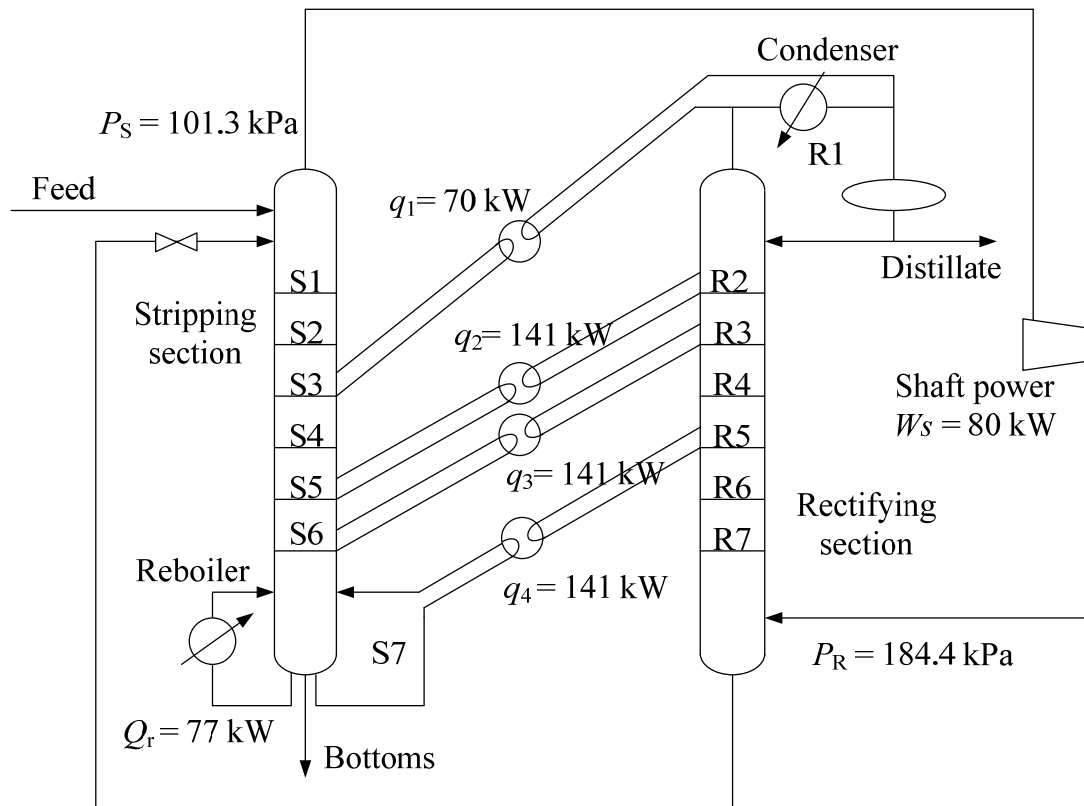


Fig. 3-11 提案する設計手法によるサイド熱交換方法（ケース 1）

ら流入する気相の温度の差に基づき算出している。

### 3-3-2 提案する HIDiC 設計方法の有用性

次に、Table 3-1 のケース 2 で与えられる条件を検討する。本条件で操作圧力を 101.3 kPa で、理論段数を 33 とし、最適化された段に原料を供給した場合の従来型蒸留操作におけるリボイラー負荷は 988 kW となる。また、最適な原料供給段は、コンデンサーを第 1 段とすれば 16 段となる。このような条件は最小還流比の 1.16 倍に相当するもので、蒸留塔の典型的な設計である。

これを HIDiC 化するにあたり、省エネルギー性能のターゲットであるリボイラー負荷と圧縮機動力を、それぞれ 99 kW と 217 kW に設定した。リボイラー負荷は従来型蒸留塔の 10 % に相当し、圧縮機動力として供給される電気を一次エネルギー変換した際の全体消費エネルギーが、従来型蒸留操作の消費エネルギーから 30 % 削減される条件である。すなわち、 $\{99 \text{ kW} + 217 \text{ kW}/0.366\} = 988$

**Table 3-2** ケース 1 に対する提案する手法と数値最適化結果の比較

		Proposed diagram	Optimized
Reboiler duty	[kW]	77.0	77.0
Compressor power	[kW]	80.0	80.0
Operating pressure			
Rectifying section	[kPa]	184.4	184.2
Stripping section	[kPa]	101.3	101.3
Side exchanger conditions			
Combination			
No.1		S3-R1	S4-R2
No.2		S5-R2	S5-R3
No.3		S6-R3	S6-R4
No.4		S7-R5	S7-R5
Duty			
No.1	[kW]	70	115
No.2	[kW]	141	130
No.3	[kW]	141	131
No.4	[kW]	141	118
Inlet tempeature difference			
No.1	[K]	11.3	12.2
No.2	[K]	11.3	12.4
No.3	[K]	11.7	12.5
No.4	[K]	13.0	12.6
Heat transfer area			
No.1	[m <sup>2</sup> ]	13.2	20.4
No.2	[m <sup>2</sup> ]	27.4	22.9
No.3	[m <sup>2</sup> ]	26.3	22.8
No.4	[m <sup>2</sup> ]	23.5	20.1
Total area	[m <sup>2</sup> ]	90.3	86.2

kW×0.7 という条件である. ここで 0.366 は電気を一次エネルギーに変換する際の発電効率である. また, これらの設計条件に加えて, サイド熱交換を行う段数を 4 と設定した.

提案する図解法で得られたサイド熱交換に関する情報を用いて厳密計算した結果を,  $H$ - $xy$  および  $T$ - $xy$  線図に示したものを **Figure 3-12** に示す. ケース 2 における分離条件は高純度であるため, リボイラー付近の段の組成変化はわずかである. このため, 回収部 RDC はリボイラー段付近で急激に縦方向(エンタルピー)に変化する. したがって, サイドリボイラーをリボイラー段付近に設置する必要がある.

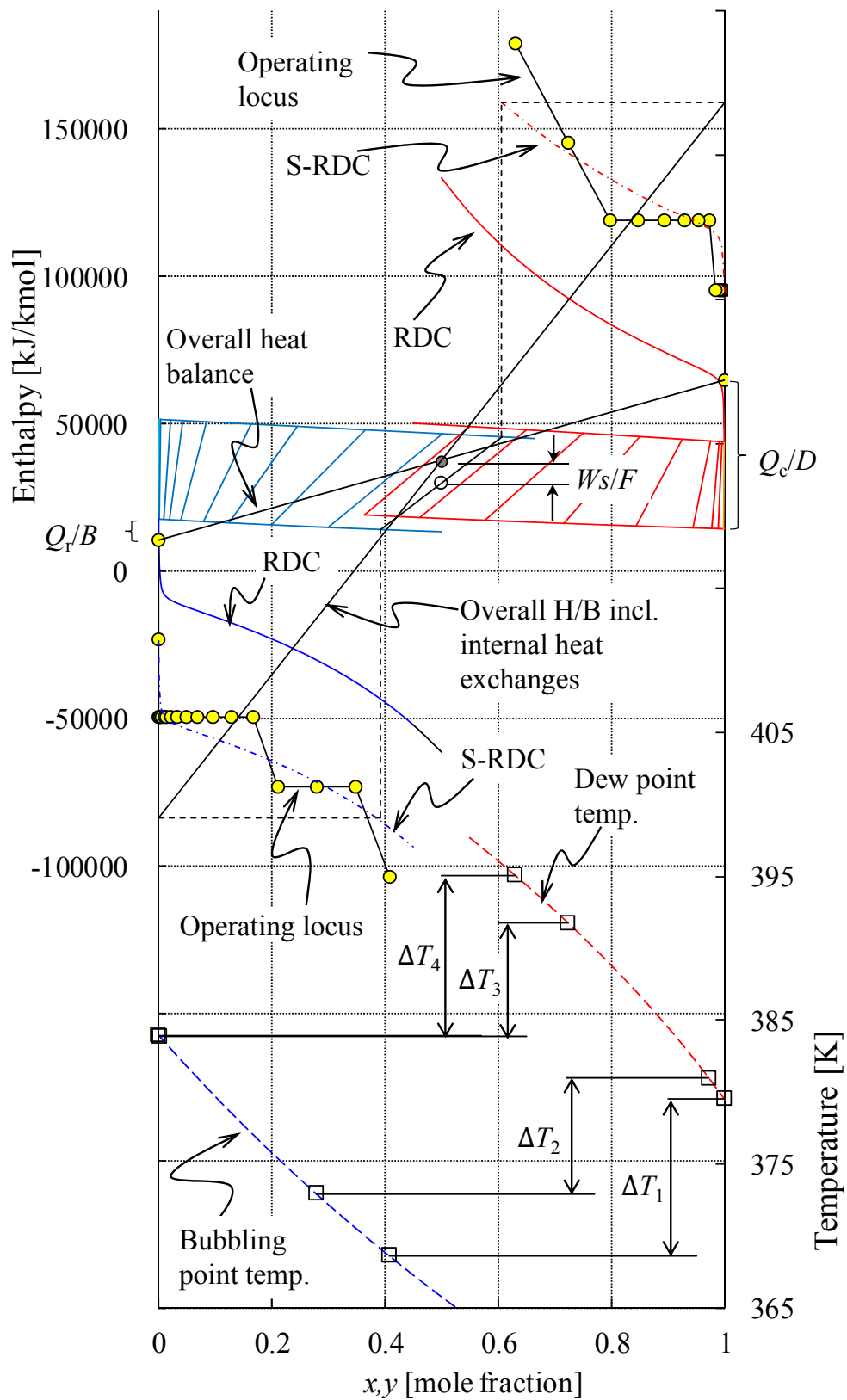


Fig. 3-12  $H$ - $xy$  &  $T$ - $xy$  線図に示す提案する設計手法による検討結果(ケース 2)

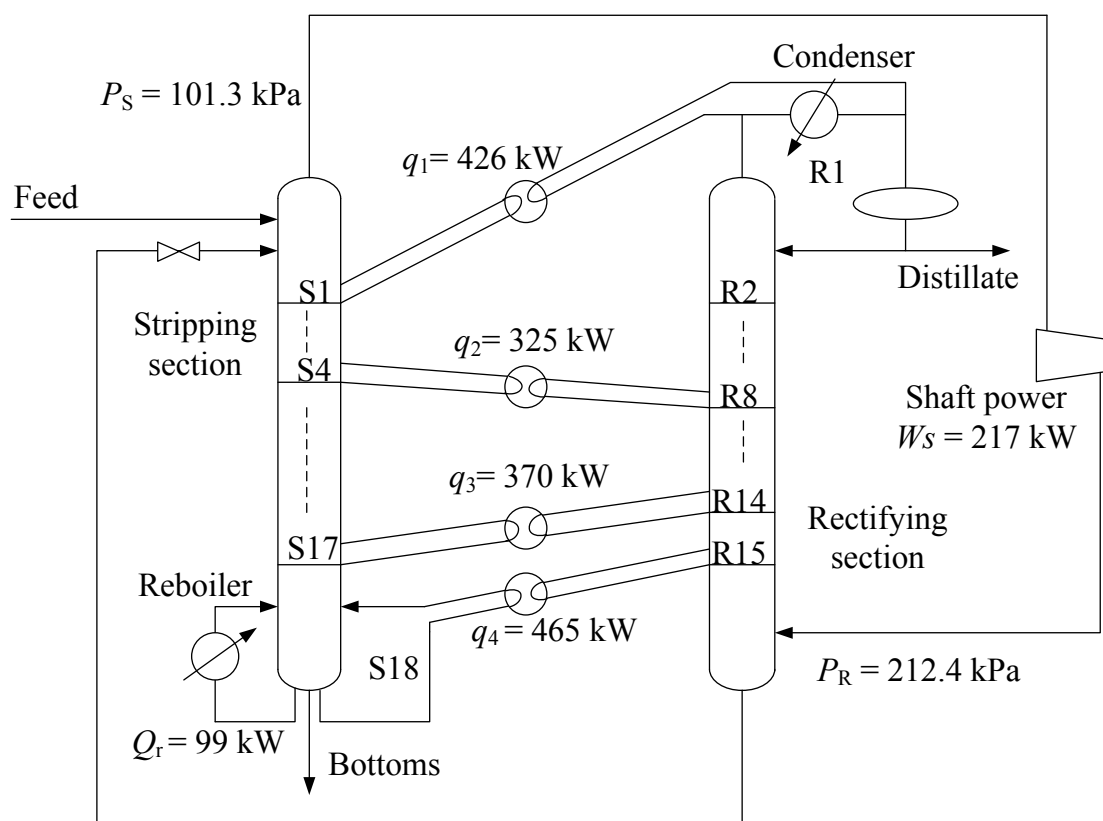


Fig. 3-13 提案する設計手法によるサイド熱交換方法（ケース 2）

Table 3-3 ケース 2 に対する提案する手法での設計結果

Reboiler duty, $Q_r$		[kW]	99	(99)
Compressor power, $W_s$		[kW]	217	(217)
Operating pressure in rectifying section, $P_R$		[kPa]	212.4	(202.3)
Side exchanger conditions				
	Combination	Duty, $q_k$	Inlet temperature difference	Heat transfer area
	[ — ]	[kW]	[K]	[m <sup>2</sup> ]
No.1	S1-R1	426 (421)	13.0 (11.0)	69.1 (81.7)
No.2	S4-R8	325 (321)	8.1 (6.1)	89.4 (122.0)
No.3	S17-R14	370 (366)	7.9 (6.2)	102.7 (131.6)
No.4	S18-R15	465 (461)	11.1 (9.4)	89.0 (104.9)

The values in parentheses are results of graphical methodology.

ケース 2 の結果を **Figure 3-13**, **Table 3-3** に示す。これらの結果に示されるように、HIDiC でサイド熱交換量とリボイラー負荷の合計は 1685 kW で、従来型蒸留における 988 kW よりも大きくなる。これは、中間段に供給する熱は、リボイラーに供給する熱と同じ効率で分離に寄与できないためである。回収部と濃縮部のサイド熱交換器の組合せは、 $T$ - $xy$  線図を参照しながら十分な温度差を確保できるようなものとし、ここでは 6 K 以上の温度差を有するものとした。回収部のサイド熱交換器の設置位置は、回収部 S-RDC の形状から既に決定されるため、濃縮部のサイド熱交換を行う位置を濃縮部操作軌跡線が濃縮部 S-RDC と良好に一致する範囲内で、温度差条件を満たすように決定した。図解法にて検討した結果を、プロセスシミュレーションによる厳密計算の入力条件として用いた。

**Table 3-3** には、プロセスシミュレーションによる厳密計算結果と、この入力条件として用いた図解法から得られた条件を示している。省エネルギー性能のターゲットである、リボイラー負荷 99 kW と圧縮機動力 217 kW が、最低温度差条件を満たしつつ、得られていることがわかる。図解法とプロセスシミュレーションによる厳密計算の差異は、サイド熱交換器の温度差と、この結果得られる伝熱面積に表れているが、それぞれのサイド熱交換における熱交換量はほぼ一致している。温度差に関する差異は、濃縮部操作圧力の差異に起因するものである。これは、前述した図解法手順での濃縮部操作圧力を決定する際の、原料供給段まわりのモデリングによる。しかし、差異は大きなものではなく、HIDiC の全体装置コストを考えると依然として無視できる範囲と考えられる。

さらにケース 2 において、同じ省エネルギー性能のもとでサイド熱交換器数を変化させた。得られた結果を比較して、最適なサイド熱交換器数の検討を行った。上記の検討はサイド熱交換を 4 箇所で行ったが、これに加えて 3 箇所、5 箇所の熱交換についても検討した。検討結果を **Table 3-4** に示す。なお、いずれの条件でも、省エネルギー性能に直接影響を及ぼすリボイラー負荷  $Q_r$  と圧縮機動力  $W_s$  は、サイド熱交換器数 4 の場合と同じ 99 kW と 217 kW にて設計を行なった。同じ省エネルギー性能にて設計を行なっているため、得られるシステムの差異はサイド熱交換器の温度差と、これにともなう伝熱面積に表れることとなる。**Table 3-4** に示されるように、サイド熱交換器数が 3 と 5 の場合のサイド熱交換器の合計伝熱面積は、393 m<sup>2</sup> と 399 m<sup>2</sup> となり、サイド熱交換器数が 4 の場合の 350 m<sup>2</sup> よりも大きくなる。これは、サイド熱交換器数が 3 のように不十分な場合、中央のサイド熱交換器で十分な温度差を確保することが難しくなるためである。同じようなことは、サイド熱交換器数が 5 の場合にも発生しており、適切な熱交換器数が存在している。一方、サイド熱交換器数の数によらず、濃縮部操作圧力はほぼ同じ値となっている。以上から、ケース 2 の条件では、サイド熱交換器数が 4 の場合が最適な熱交換器数であることがわかる。

このように提案する設計手法では、与えられた省エネルギー性能に対して異なるサイド熱交換器数に対する設計を迅速に検討することができる。このため、省エネルギー性能の設定を変化させ、



**Table 3-4** ケース 2 におけるサイド熱交換器数に対する設計結果比較

Number of side heat exchangers		3	4	5
Total amount of heat at side heat exchangers	[kW]	1412	1586	1570
Sum of heat transfer area	[m <sup>2</sup> ]	393	350	399
Operating pressure in rectifying section	[kPa]	225	212	213
Combination	No.1	S3-R1	S1-R1	S1-R1
	No.2	S17-R12	S4-R8	S4-R6
	No.3	S18-R15	S17-R14	S11-R13
	No.4		S18-R15	S17-R14
	No.5			S18-R15
Inlet temperature difference	No.1	12.1	13.0	13.4
	No.2	4.4	8.1	7.3
	No.3	12.3	7.9	5.8
	No.4		11.1	7.8
	No.5			11.0

最適なサイド熱交換器数を迅速に決定できるため、概念設計段階で極めて有用な手法といえる。

### 3-4 多成分系への拡張

本章で新たに提案した HIDiC の設計手法は、2 成分系を想定して設計手法の説明と検証を行ったが、商業プラントの蒸留分離操作は多成分系で行われることが殆どである。本節では、提案する手法の多成分系への拡張法を示すと共に、方法の妥当性を例題により検証する。

検討対象系を **Table 3-5** に示す。この系は 9 成分からなり、分離のキー成分は、*o*-キシレンとキュメンである。分離条件は、缶出製品における C8 芳香族（エチルベンゼン～*o*-キシレンの合計）が 1.5 mol %，留出製品における C9 芳香族（キュメン～1,2,4 トリメチルベンゼンの合計）が 0.7 mol % である。すなわち、多成分からなる原料で、分離条件も多成分で定義されるものである。この多成分系を、キー成分である *o*-キシレンと、これよりも沸点の低い成分（トルエン～*o*-キシレン）をまとめて本系における軽質成分と定義し、同様にキュメンよりも沸点の高い成分（キュメン～1,2,4 トリメチルベンゼン）をまとめて本系における重質成分と定義し、擬似的な 2 成分系を想定する。

提案する  $H$ - $xy$  と  $T$ - $xy$  統合線図を描く為には、擬似 2 成分の任意の組成における気液平衡関係と、その組成に対応した飽和状態のエンタルピーと温度が必要である。しかし、擬似 2 成分の擬似軽質

成分・擬似重質成分はそれぞれ複数の成分で構成されているため、飽和条件における個々の成分組成を特定することは困難である。そこで、まず厳密計算を行うことができるプロセスシミュレーターを用いて、指定された分離条件を満たす従来型蒸留操塔の設計問題を解き、各理論段における気液組成、温度、エンタルピー、気液流量などを得る。各段から出る気相と液相の各ストリームは気液平衡関係にあるから、平衡状態における条件が得られることになる。この際、従来型蒸留操作の操作圧力を、HIDiC 化する際の回収部の操作圧力とすれば、得られる組成などの情報から回収部に対する  $H$ - $xy$  および  $T$ - $xy$  線図を得ることができる。すなわち、回収部における RDC, S-RDC および液組成に対する沸点相当温度曲線を線図上に与えることができる。さらに、設定した段数、目標とする省エネルギー性能における HIDiC 化後のリボイラー負荷  $Q_r$  を満たすように、S-RDC に基づき回収部操作軌跡線を与える。これらの操作は 2 成分系の場合の図解法と何ら変わらない。さらに、操作軌跡線を決定する際にサイド熱交換量も決まるため、3-2-3-3 項で詳述したように濃縮部操作圧

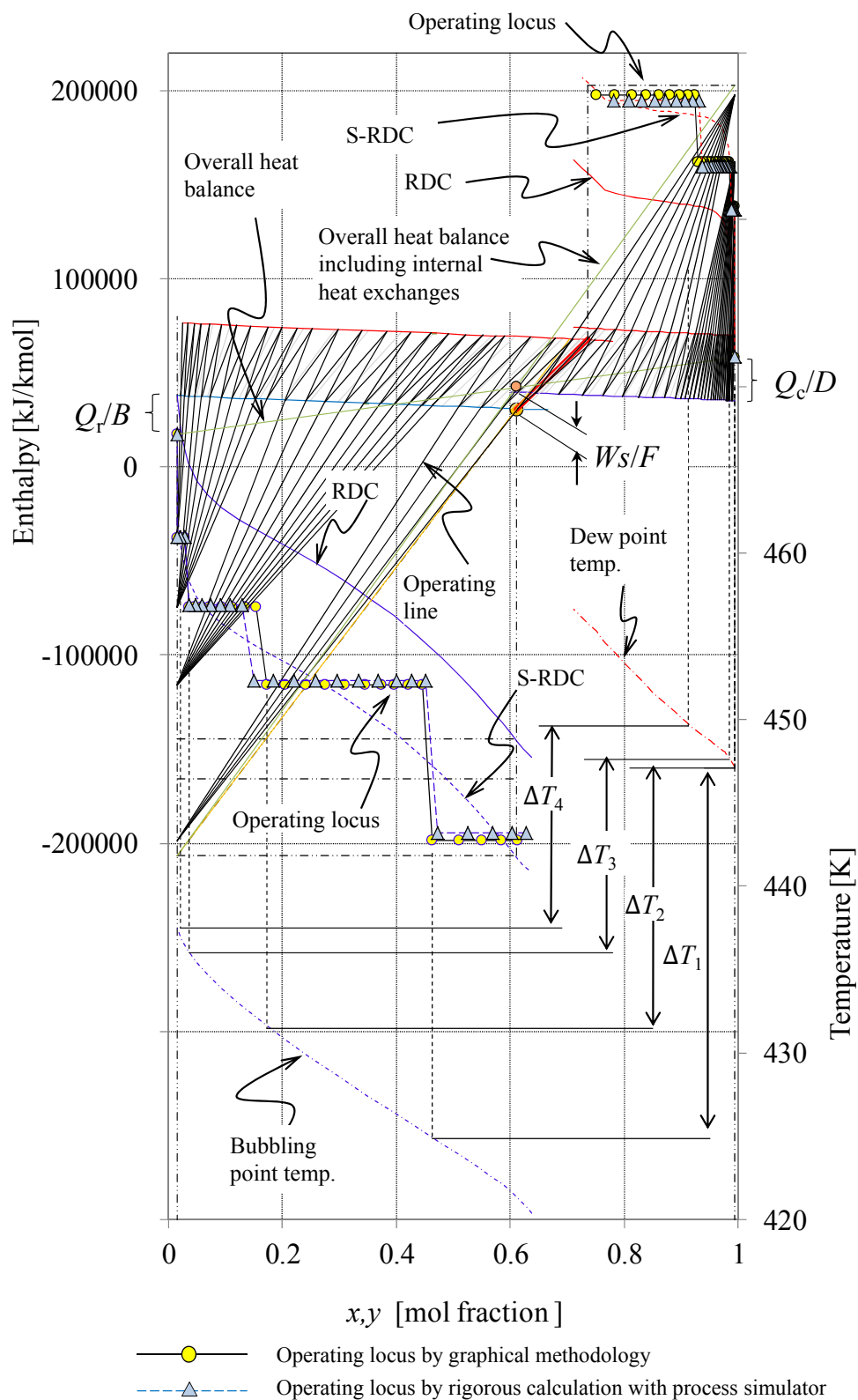
**Table 3-5** 多成分系検討プロセス条件

		Case 3
Feed rate	[kmol/s]	1/36
Feed composition	[mol %]	
Toluene		0.5
Ethylbenzene		10.0
p-Xylene		11.0
m-Xylene		25.0
o-Xylene		14.5
Cumene		1.0
n-Propylbenzene		2.2
m-Ethyltoluene		15.8
1,2,4 Trimethylbenzene		20.0
Liquid molar fraction in feed	[ - ]	1
Separation specifications		
C9 aromatics in distillate	[mol %]	0.7
C8 aromatics in bottoms	[mol %]	1.5
Number of theoretical stages		
Rectifying section (incl. condenser)	[ - ]	30
Stripping section (incl. reboiler)	[ - ]	25
Overall heat transfer coefficient	[kW/(m <sup>2</sup> K)]	0.5
Compressor shaft power	[kW]	dependent on target energy saving
Pressure drop		
Theoretical stages	[kPa]	0
Condenser	[kPa]	0
Reboiler	[kPa]	0
Pressure		
Rectifying section	[kPa]	variable
Stripping section	[kPa]	101.3

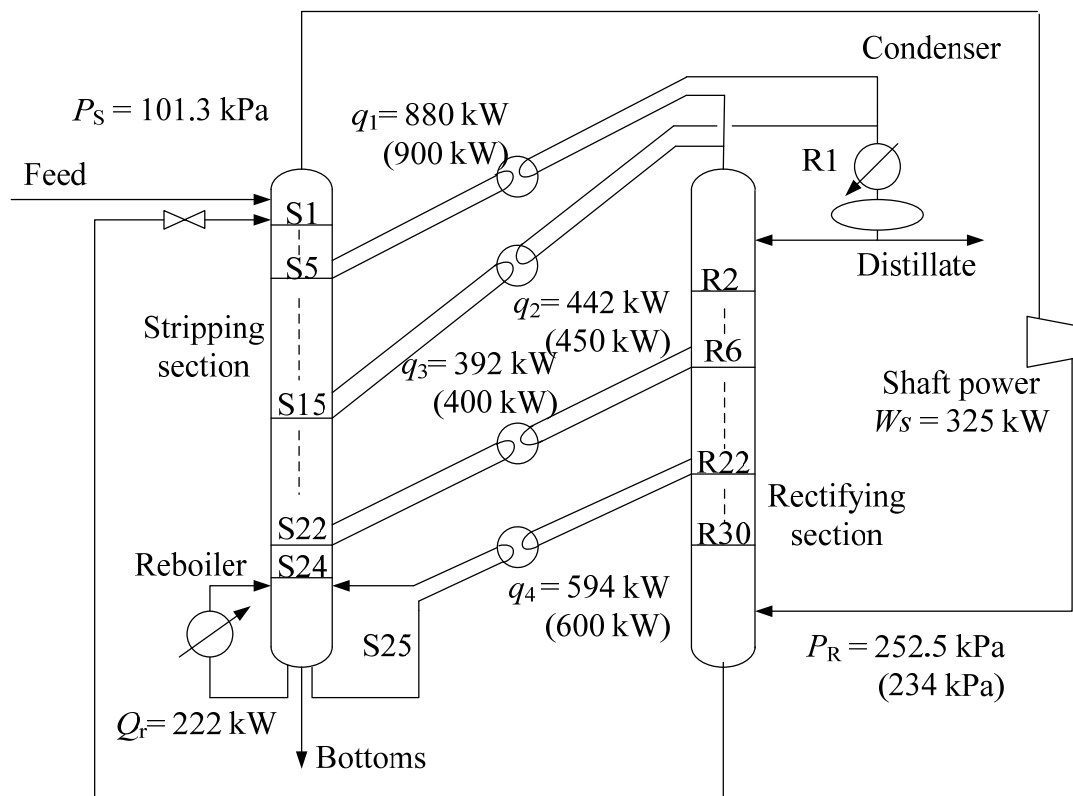
力が決定される。この際、圧縮機入口における比熱比とガス温度は、原料を回収部操作圧力とした際にフラッシュした気相組成か、原料が飽和状態あるいは過冷却された液相であれば、液相組成に対する気相平衡組成での比熱比と温度を用いる。続いて2成分系と全く同様の手法で濃縮部のRDC, S-RDC, ガス組成に対する凝縮点相当温度曲線などが決定される。最終的に温度差と伝熱面積を確認して、これが許容できる範囲であれば、得られた内部熱交換段の組合せ、各熱量を入力値として厳密計算によるHIDiCのプロセスシミュレーションを行う。

操作圧力101.3 kPaのもとで、Table 3-5に示す段を有する従来型蒸留塔は最小還流比の1.15倍の還流比の状態に相当し、そのリボイラー負荷 $Q_{r-conv}$ は2.22 MWである。この条件を基準として目標とする省エネルギー性能を、電気を一次エネルギー換算して評価するものとし、50%の消費エネルギー削減と設定した。この際、HIDiC化した際のリボイラー負荷を $Q_{r-conv}$ の10%相当量と設定した。この設定では、圧縮比動力 $Ws$ は325 kWとなる。ただし、圧縮機の断熱効率は先のケース同様75%とし、いかなる機械損失も無視した。なお、サイド熱交換器の数は4とした。また、気液平衡推算法にはSoave-Redlich-Kwong式を用い、プロセスシミュレーションはインベンス社の定常平衡段モデルシミュレーターPro/II<sup>®</sup>を用いた。

検討結果を提案する $H$ - $xy$ ,  $T$ - $xy$ 線図に示す(Figure 3-14)。図には、図解法で得られる操作軌跡線と、図解法の結果を用いてプロセスシミュレーターにて厳密計算を行った結果得られる操作軌跡線をそれぞれ○と△で示した。また、図解法における操作線も併せて示した。更に、サイド熱交換段の組合せをフロー図のかたちでFigure 3-15に示し、リボイラー負荷、圧縮機動力、濃縮部操作圧力、サイド熱交換に関する設置段の組合せ、熱負荷、入口温度差、必要伝熱面積について、Table 3-6に示した。ここでも、図解法で得られた条件と、これを初期値としてプロセスシミュレーターを用いた厳密計算結果を併せて示した。なお、原料液相組成と平衡組成となる気相組成は、今回の条件、すなわち断熱圧縮効率75%で圧縮すると一部のガスが凝縮する現象がおきる。後述するようにHIDiCで用いる圧縮機のタイプは、その特性や経済性の面から遠心型、あるいはターボ式遠心型が好ましいが、これらのタイプ（特に後者）では圧縮工程に相当するインペラー部でガスが凝縮すると振動を起こす懸念があるため、そのような場合には入口ガスを過飽和状態とし、凝縮を回避するように設計する必要がある。このための熱源として、外部用役を用いると省エネルギー性能が低下してしまう。そこで、系内での熱統合を考えると、濃縮部最下部から回収部最上部にリサイクルされるストリームが、温度レベルと熱負荷ともに利用できる。本ケースで、圧縮機出口でのガスの凝縮を回避するために必要な熱交換量は197 kWとなり、回収部へのストリームの出口温度(高温側)と圧縮機入口温度(低温側)の温度差は10.3 Kとなり、温度交差を起こさずに熱交換を行っていることが確認できる。また、この熱交換に関しては、ともに系内のストリームでの熱交換だが、塔



**Fig. 3-14** 提案する設計手法の多成分系への拡張(ケース 3)  
( $H$ - $xy$  &  $T$ - $xy$  線図による作図法)



The values in parentheses are results by graphical methodology.

**Fig. 3-15** 提案する設計手法の多成分系への拡張  
検討結果フロー図（ケース 3）

**Table 3-6** 提案する設計手法の多成分系への拡張 — 設計結果(ケース 3)

Reboiler duty, $Q_r$		[kW]	222	(222)
Compressor power, $W_s$		[kW]	325	(325)
Operating pressure in rectifying section, $P_R$		[kPa]	252.5	(234.0)
Side exchanger conditions				
Combination		Duty, $q_k$	Inlet temperature difference	Heat transfer area
[ — ]		[kW]	[K]	[m <sup>2</sup> ]
No.1	S5-R1	880 (900)	27.3 (22.2)	66.0 (81.0)
No.2	S15-R1	442 (450)	18.8 (15.6)	48.0 (57.8)
No.3	S22-R6	392 (400)	15.4 (11.6)	51.4 (68.8)
No.4	S25-R22	594 (600)	16.1 (12.1)	75.5 (99.0)

The values in parentheses are results of graphical methodology.

外部のストリーム間での熱交換であることから、 $H$ - $xy$ 、 $T$ - $xy$  線図上には表現することは不要である。

また、図解法の段階で各サイド熱交換器の伝熱面積を算出する際、2 成分系の場合は、図解法で得られる軽質成分の組成が分かれば、そのストリームの組成が特定できるため、熱負荷を与えれば出口温度を算定することが可能である。しかしながら、多成分系の場合は擬似 2 成分の組成と、この組成に相当する温度は得られるものの、詳細な組成を特定することができないため、これだけの情報からサイド熱交換器の出口温度を算定することはできない。このため、ここでは入口温度を用いてサイド熱交換器の必要伝熱面積を算定するものとした。

Figures 3-14, 15 および Table 3-6 から、図解法で得られた結果と、厳密計算による結果は良く一致していることが確認できる。差異は、上節のケース 2 の結果同様に、濃縮部操作圧力とこれに付随するサイド熱交換器入口温度差と必要伝熱面積に表れている。しかし、先のケース 2 同様、必要伝熱面積は HIDiC 装置の全体コストから考えると重要な差ではない。濃縮部操作圧力の差異は、気液平衡関係や平衡状態におけるエンタルピーの大きさに顕著な差をもたらす程のものではなく、したがって、濃縮部における RDC, S-RDC の位置とこれに基づく操作軌跡線はほぼ一致している。このため、サイド熱交換段の設置位置や、段の組合せ、熱負荷は、図解法と厳密計算の間で良好に一致する。濃縮部操作圧力の差異は、2 成分系の場合同様に Figure 3-8 とこれを基にした濃縮部操作圧力算出モデルに起因するものと考えられる。

以上の検討から、提案する手法を多成分系に適用した際の結果は、2 成分系で得られている結果と極めて一致しており、提案する手法が多成分系にも拡張的に適用できると考えることができる。

### 3-5 結言

離散的で限られた段間でサイド熱交換する内部熱交換型蒸留塔の革新的な設計手法を提案した。通常の Ponchon-Savarit 法を、可逆蒸留操作における塔内エンタルピー情報と、組成に対する温度に関する情報を明確に表現できるように大幅に改良した。すなわち、可逆蒸留操作線と操作軌跡線という概念を新たに提案し、 $H$ - $xy$  線図上に表現した。そして、 $T$ - $xy$  線図を  $H$ - $xy$  線図に統合して表現するようにした。これらの情報を用いることで、設計者は目標とする省エネルギー性能を設定したうえで、サイド熱交換をどの段で行うべきか、サイド熱交換の数をいくつにするか、どの段間でサイド熱交換を行うべきかを決定することができる。提案する手法は、最適設計となる保証はないものの、数理的に最適化した結果と良好に一致することを確認した。この手法は、様々なプロセス条件に対して、直接的でインタラクティブに情報を得ることができるため、概念設計の初期段階で特に有用である。

### 3-6 記号

$A$	heat transfer area of heat exchanger	[m <sup>2</sup> ]
$B$	bottoms flow rate	[kmol/s]
$D$	distillate flow rate	[kmol/s]
$F$	feed flow rate	[kmol/s]
$h, H$	enthalpy per unit molar rate	[kJ/kmol]
$h', H'$	enthalpy per unit molar rate of hypothetical state	[kJ/kmol]
$h'_{B(j)}$	liquid enthalpy per unit molar rate of hypothetical state at stage $j$ in the stripping section	[kJ/kmol]
$H'_{D(i)}$	vapor enthalpy per unit molar rate of hypothetical state at stage $i$ in the rectifying section	[kJ/kmol]
$L$	liquid molar flow rate	[kmol/s]
$N_E$	number of side exchanges in HIDIc	[ - ]
$N_S$	number of theoretical stage in stripping section	[ - ]
$N_T$	number of total theoretical stages including condenser and reboiler	
$P$	pressure	[kPa]
$Q$	heat duty of reboiler or condenser	[kW]
$q$	heat duty of side exchanger	[kW]
$q_{ij}$	heat duty of side exchanger between stage $i$ and stage $j$	[kW]
$R$	gas constant	[J/(kmol-K)]
$T$	temperature in rectifying section	[K]
$t$	temperature in stripping section	[K]
$U$	overall heat transfer coefficient	[kW/(m <sup>2</sup> K)]
$V$	vapor molar flow rate	[kmol/s]
$W_s$	compressor shaft power	[kW]
$x$	liquid molar fraction of light component	[ - ]
$y$	vapor molar fraction of light component	[ - ]
$z$	molar fraction of light component in mixed phase feed	[ - ]

(Subscript)

B	bottoms
c	condenser
D	distillate
F	feed
$i$	arbitrary stage in rectifying section
$j$	arbitrary stage in stripping section
$m$	number of theoretical stages in rectifying section
$k$	serial number of side exchanger
R	rectifying section
r	reboiler
S	stripping section

### 3-7 参考文献

- 1) Harwardt, A., and W. Marquardt, "Heat-integrated distillation columns: Vapor recompression or internal heat integration?," *AIChE J.*, **58**, 3740-3750 (2012)
- 2) Dhole V.R., and B. Linnhoff, "Distillation column targets," *Comput. Chem. Eng.*, **17**, 549-560 (1993)
- 3) Gadalla, M., L. Jimenez, Z. Olujić, and P. J. Jansens, "A thermo-hydraulic approach to conceptual design of an internally heat-integrated distillation column (i-HIDiC)," *Comput. Chem. Eng.*, **31**, 1346-1354 (2007)
- 4) Ho, T. J., C. T. Huang, L. S. Lee, and C. T. Chen, "Extended Ponchon-Savarit method for graphically analyzing and designing internally heat-integrated distillation columns," *Ind. Eng. Chem. Res.*, **29**, 350-358 (2010)
- 5) 河東 準, 岡田 功, "新版 蒸留の理論と計算", 工業図書株式会社, 東京 (1975)



## 第4章 可逆蒸留線と操作軌跡線を用いた内部熱交換型蒸留塔(HIDiC)の適性判断

### 4-1 緒言

実際の蒸留装置は有限の理論段を有することから、HIDiC では最適なサイド熱交換の与え方が存在し、これが塔内温度分布とは無関係に与えられる。このような最適なサイド熱交換配置(すなわち、サイド熱交換を行う段(組成)、サイド熱交換量、熱交換する段の組合せ)に近似した状態を得るためには、濃縮部と回収部を並列設置した際の隣り合う段間で、全段にわたって温度差に大きく依存した熱負荷で連続的に内部熱交換を行うよりも、限られた適切な段間のみでサイド熱交換を行えば良いことを前章までに示してきた。また、このように限られた最適な段間のみでサイド熱交換を行う HIDiC の設計手法についても、塔内の熱的な状態を表現できる Ponchon-Savarit 法に注目し、これに大幅な改良を施した線図を利用する設計手法を前章で示した。これにより、どの組成(段)で熱の供給・除去を行うか、それぞれのサイド熱交換器で熱交換量をどのように与えるべきか、どの段間でサイド熱交換を行うべきか、を決定することが可能となった。

設計手法が確立されても、HIDiC を適用して省エネルギー化できるかを全ての蒸留塔に対して検討することは非効率である。HIDiC がどのような系に適用できるかについて考えると、HIDiC はヒートポンプ効果を利用した技術であることから、全ての蒸留塔に対して有効に省エネルギー性を得られるものではないことは容易に推測できる。HIDiC の概念を SRV 蒸留法として提案した Mah ら<sup>1)</sup>が既に報告しているように、キー成分の相対揮発度や、圧縮機に供給されるガスの組成の圧縮比に対する飽和温度の変化が、その適性に影響を与える。これらは、一般的な塔頂ガス再圧縮型ヒートポンプシステム(以下、VRC と呼ぶ)でも当てはまることである。HIDiC は VRC と異なり、塔内のエンタルピー状態に直接影響を与えるため、Mah らが指摘した点に加えて塔内エンタルピーの状態に配慮した適性の判断が求められる。井内ら<sup>2)</sup>は CGCC 解析を用いて、HIDiC の適用に関する適性を判断することを提案した。しかし、CGCC は無限段の蒸留塔の挙動を基準としているため、有限段の蒸留塔でサイド熱交換器を設置した際に、リボイラー負荷あるいはコンデンサー負荷をその熱量分削減できないことや、サイド熱交換を行う位置(段)により、リボイラーあるいはコンデンサーの熱負荷削減率が大きく異なることを一切考慮することができない、という欠点を有している。また CGCC では、熱交換を行う段の組合せを検討することはできない。このため有限段の蒸留塔である HIDiC の適性評価に用いることは不適切である。

前章で提案した線図は、想定する段数をもつ HiDiC の塔内における任意の組成に対するエンタルピー・温度に関する情報を得ることができることや、各段の組成・エンタルピー・温度を正確に把握することができるため、サイド熱交換を行う段の組合せを検討することが可能である。このため、この線図を HiDiC 適用に関する適性を評価することに用いることができると考えられる。本章では、原料組成や製品スペックをパラメータとして、前章で提案した線図を活用し、HiDiC をどのような系に適用することが適切か考察した。

#### 4-2 検討対象プロセス条件

蒸留操作においては、気液平衡関係、原料組成、製品純度、操作圧力などが消費エネルギーに大きく影響する。そこで、前章と同じベンゼン・トルエンの 2 成分系で、原料組成、製品純度をパラメータとし、どのような条件のときに、どのような理由で HiDiC を用いるメリットがあるかを検討した。検討に用いた条件を **Table 4-1** に示した。原料はモル基準の液比を 0.5 で一定とし、軽質成分のモル分率が 0.2, 0.5, 0.8 の場合について検討した。更に、製品純度については留出製品と缶出製品を低純度まで分離する場合と高純度まで分離する場合を想定し、9 つの組合せを検討した。HiDiC の設計条件は以下のように設定した。まず、省エネルギー性の比較対象である従来型蒸留操作で、操作圧力を 101.3 kPa とし、リボイラー負荷  $Q_{r-conv}$  を算出する。この際、最小還流比の約 1.15 倍となるように理論段を設定した。これは、従来型蒸留塔の一般的な設計点である。次に、HiDiC 化した際の電気を含めた消費エネルギーが、従来型蒸留操作の 70 % となるよう設定する。具体的には、リボイラー負荷  $Q_r$  を  $Q_{r-conv}$  の 10 % に相当する負荷に設定し、更に圧縮機動力  $Ws$  を発電効率 36.6 % で一次エネルギーに変換した後に  $Q_r$  に加えた値が、設定消費エネルギーとなるようにする。HiDiC における回収部操作圧力は 101.3 kPa とし、圧縮機の断熱効率は 75 % とした。また、HiDiC の濃縮部と回収部の合計理論段数は、従来型蒸留操作の場合と同じとし、サイド熱交換器は 4 基設置するものとした。HiDiC 化する際のリボイラー負荷、圧縮機動力、理論段数が設定されるため、圧縮機出口圧力、すなわち濃縮部操作圧力は、サイド熱交換を行う段の組成、熱負荷、熱交換段の組合せの結果で決まる圧縮機入口流量により与えられることになる。なお、リボイラー負荷を基準として消費エネルギーの削減率を設定したのは、検討対象系ではコンデンサーにおける用役（例：空気、冷却水）よりもリボイラーにおける用役（例：スチーム）の方が一般的に高価であり、その削減が重要と考えられるためである。

与えられた各分離条件において、上述したように設定された一定の省エネルギー性能を与える HiDiC を設計する。最終的に得られる差異は、それぞれのサイド熱交換器における高温側と低温側

の温度差に表れる. サイド熱交換器における温度差は, HIDiC を設計する際には重要な因子である. 設計する際に, サイド熱交換器の伝熱面積を塔サイズとは独立して設定できると仮定しても, 高温

**Table 4-1** 適性系判断検討における検討対象プロセス条件

		Case 4-1	Case 4-2	Case 4-3	Case 4-4	Case 4-5
Benzene in feed, $z_F$	[mole frac]	0.2	0.5	0.8	0.2	0.5
Liquid mole fraction in feed	[mole frac]	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
Benzene in distillate, $x_D$	[mole frac]	0.999	0.999	0.999	0.999	0.999
Benzene in bottoms, $x_B$	[mole frac]	0.001	0.001	0.001	0.025	0.025
Feed flow rate, $F$	[kmol/h]	100	100	100	100	100
Distillate flow rate, $D$	[kmol/h]	19.9	50.0	80.1	18.0	48.8
Bottom flow rate, $B$	[kmol/h]	80.1	50.0	19.9	82.0	51.2
Convventional Distillation						
Reboiler duty, $Q_{r-conv}$	[kW]	952	989	1008	798	948
Reflux, $L_{Ref}$	[kmol/h]	144.1	116.2	87.3	128.3	112.9
$L_{Ref}/D$ to min. $L_{Ref}/D$	[ - ]	1.15	1.16	1.16	1.13	1.16
No. of theoretical stages (*)						
- Rectifying section	[ - ]	14	15	19	14	15
- Stripping section	[ - ]	22	18	15	8	10
HIDiC						
Reboiler duty, $Q_r$	[kW]	95	99	101	80	95
Compressor power, $W_s$	[kW]	209	217	221	175	208
No. of theoretical stages (*)	[ - ]	36	33	34	22	25
Operating pressure						
- Rectifying section, $P_R$	[kPa]	variable	variable	variable	variable	variable
- Stripping section, $P_S$	[kPa]	101.3	101.3	101.3	101.3	101.3

		Case 4-6	Case 4-7	Case 4-8	Case 4-9
Benzene in feed, $z_F$	[mole frac]	0.8	0.2	0.5	0.8
Liquid mole fraction in feed	[mole frac]	0.5	0.5	0.5	0.5
Benzene in distillate, $x_D$	[mole frac]	0.999	0.975	0.975	0.975
Benzene in bottoms, $x_B$	[mole frac]	0.025	0.001	0.001	0.001
Feed flow rate, $F$	[kmol/h]	100	100	100	100
Distillate flow rate, $D$	[kmol/h]	79.6	20.4	51.2	82.0
Bottom flow rate, $B$	[kmol/h]	20.4	79.6	48.8	18.0
Convventional Distillation					
Reboiler duty, $Q_{r-conv}$	[kW]	995	947	951	890
Reflux, $L_{Ref}$	[kmol/h]	86.4	142.1	109.9	71.0
$L_{Ref}/D$ to min. $L_{Ref}/D$	[ - ]	1.15	1.15	1.15	1.14
No. of theoretical stages (*)					
- Rectifying section	[ - ]	19	10	9	8
- Stripping section	[ - ]	10	22	19	16
HIDiC					
Reboiler duty, $Q_r$	[kW]	99	95	95	89
Compressor power, $W_s$	[kW]	219	208	209	195
No. of theoretical stages (*)	[ - ]	29	32	28	24
Operating pressure					
- Rectifying section, $P_R$	[kPa]	variable	variable	variable	variable
- Stripping section, $P_S$	[kPa]	101.3	101.3	101.3	101.3

\* : No. of theoretical stages include the reboiler stage and the condenser stage.

側と低温側で温度交差が起きないようにすることは当然であるし、伝熱面積が過大にならないよう適切な温度差が必要になる。また、装置の運転を考えると、何らかの外乱により塔内組成の変動が発生した場合に、サイド熱交換器の温度差が小さ過ぎると、得られる内部熱交換量の変動割合が大きくなり好ましくない。ここでは任意のサイド熱交換器の高温側と低温側の入口温度差が 7 K 以上となるように設計するものとした。すなわち、入口温度差の 7 K に対する余裕度が、検討対象系の省エネルギー性能の余裕度を示すものと考えることができる。なお、総括伝熱係数は  $0.5 \text{ kW}/(\text{m}^2 \text{ K})$  とした。

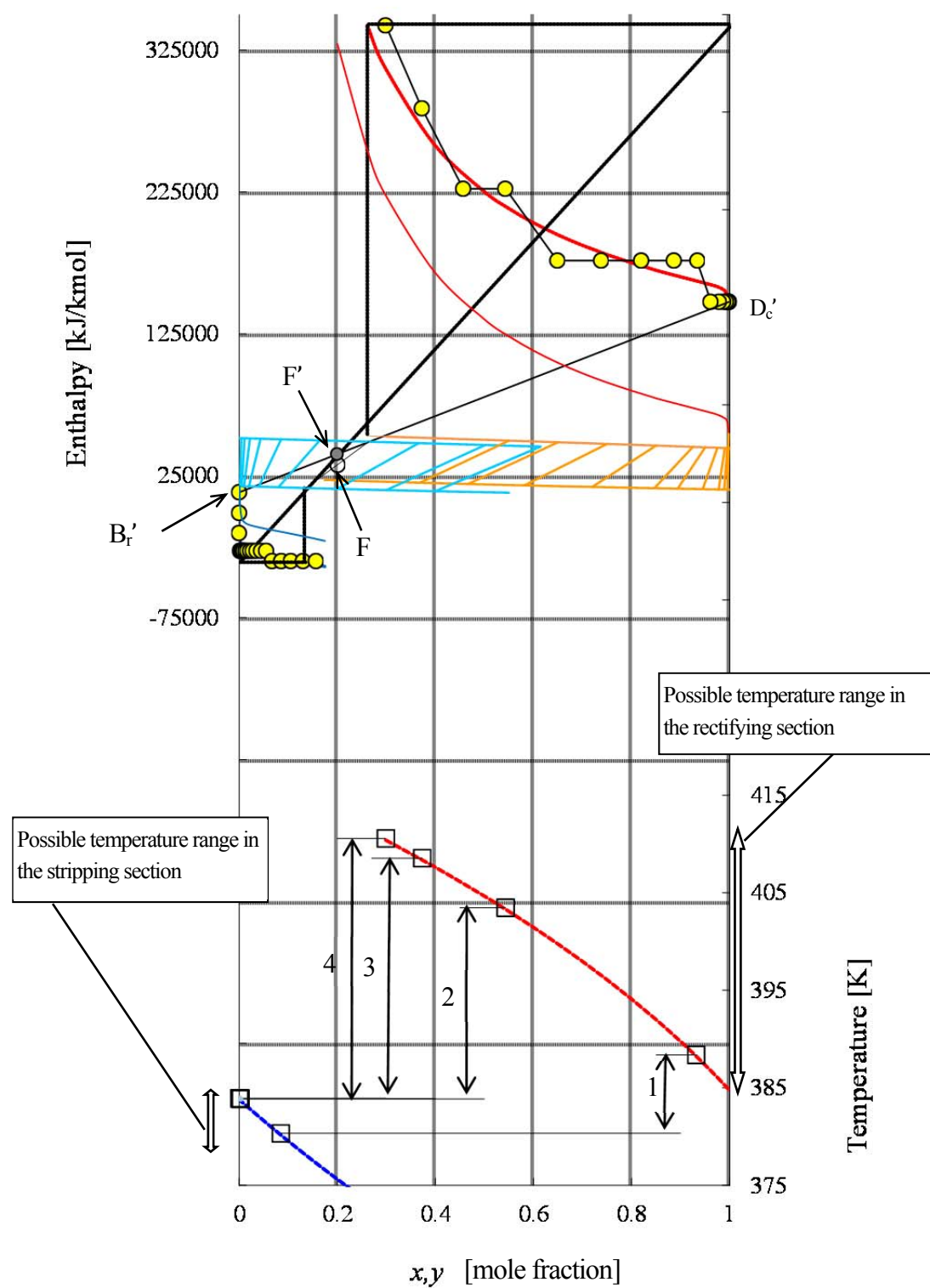
プロセスシミュレーションは前章までと同様で、定常平衡段モデルシミュレーターであるインベンス社の Pro/II<sup>®</sup>を用いて行った。また、気液平衡推算法には Soave-Redlich-Kwong 式を用いた。

### 4-3 検討結果

#### 4-3-1 原料組成の影響

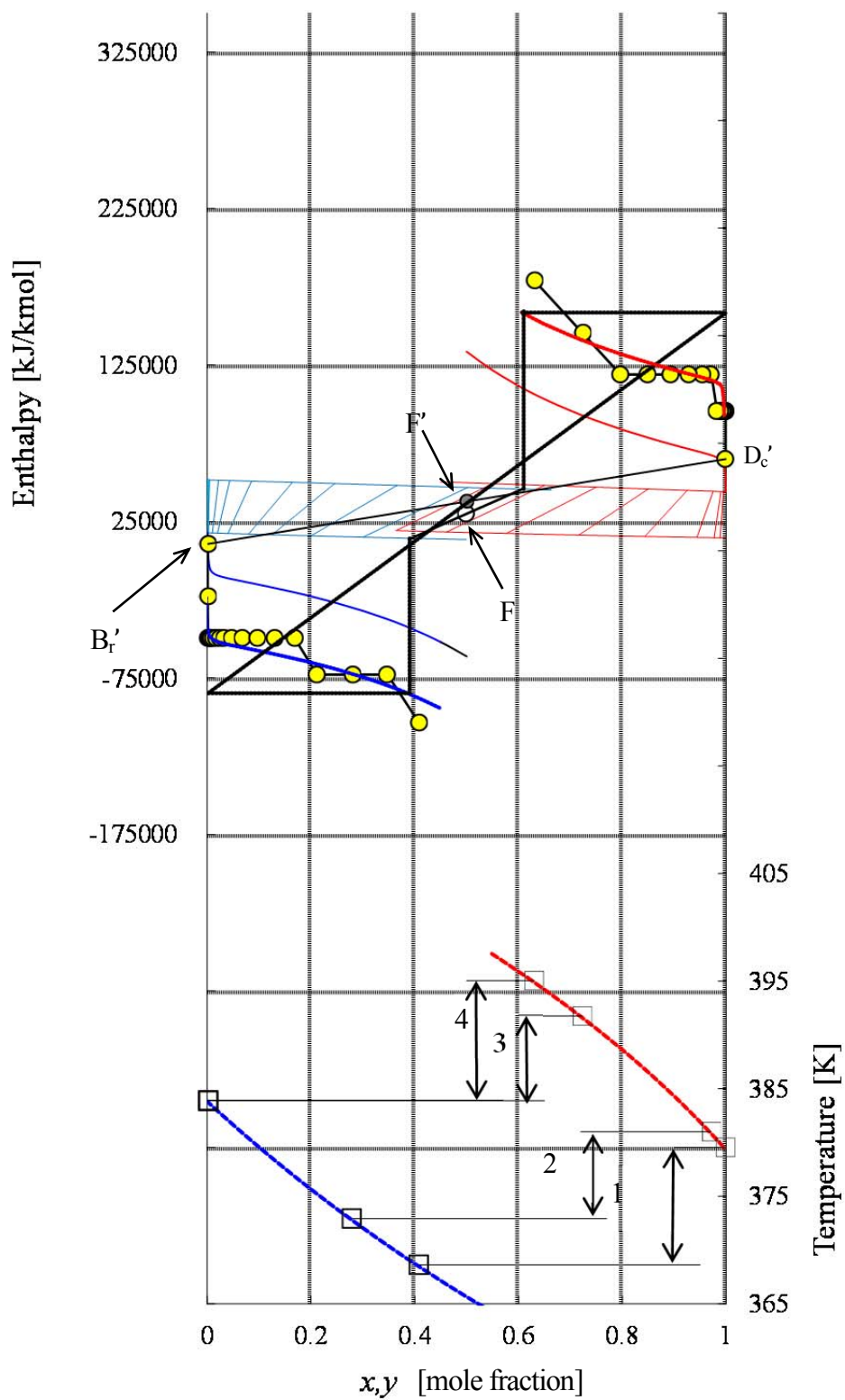
Figures 4-1(a)–(c)にケース 4-1 から 4-3 の検討結果を、前章で提案した  $H$ - $xy$  および  $T$ - $xy$  線図を用いて示した。以下では、まず Figure 4-1(c)を用いて考察の際に用いる記号を付した点について説明する。B 点は缶出液に相当する状態で、同時に回収部可逆蒸留線の起点である。B<sub>f</sub>'点は回収部操作軌跡線の起点で、シフト可逆蒸留線の起点とは必ずしも一致しない。濃縮部では、D 点は留出液に相当する状態で、D<sub>c</sub>'点は濃縮部操作軌跡線の起点である。先程と同様で、D<sub>c</sub>'点はシフト可逆蒸留線の起点とは必ずしも一致しない。また、B 点と B<sub>f</sub>'点の縦軸上の差異はリボイラー負荷に相当し、D<sub>c</sub>'点と D 点の差異はコンデンサー負荷に相当する。更に、F 点はフィードの組成と単位モル流量あたりのエンタルピーを表したもので、F'点は F 点に対して圧縮機動力を補正したものである。そして、B<sub>f</sub>'点、F'点および D<sub>c</sub>'点は一直線上で示され、この関係が全熱収支を表す線となる。更に、F'点を通過するもうひとつの直線 (Figure 4-1(c)中の線①–②) は、シフト可逆蒸留線における合計サイド熱交換を算入した全熱収支線を示す。この線が、回収部シフト可逆蒸留線と濃縮部シフト可逆蒸留線の相対関係を表している。Figure 4-1(c)ではこれらの点を全て示しているが、Figures 4-1(a), (b)では、全ての点を示す記号を与えると図が見難くなるため、一部の記号のみを記載した。

本検討では、達成すべき省エネルギー性能の条件として、HIDiC におけるリボイラー負荷と圧縮機動力を前もって与えるため、省エネルギー性能は全てのケースで同一であり、各ケースの差異は各サイド熱交換機の組合せ方とその伝熱面積に現れる。サイド熱交換器の温度差が目標である 7 K よりも小さい値にしかできない場合は、濃縮部の操作圧力を高くし、温度差を大きくする必要があ



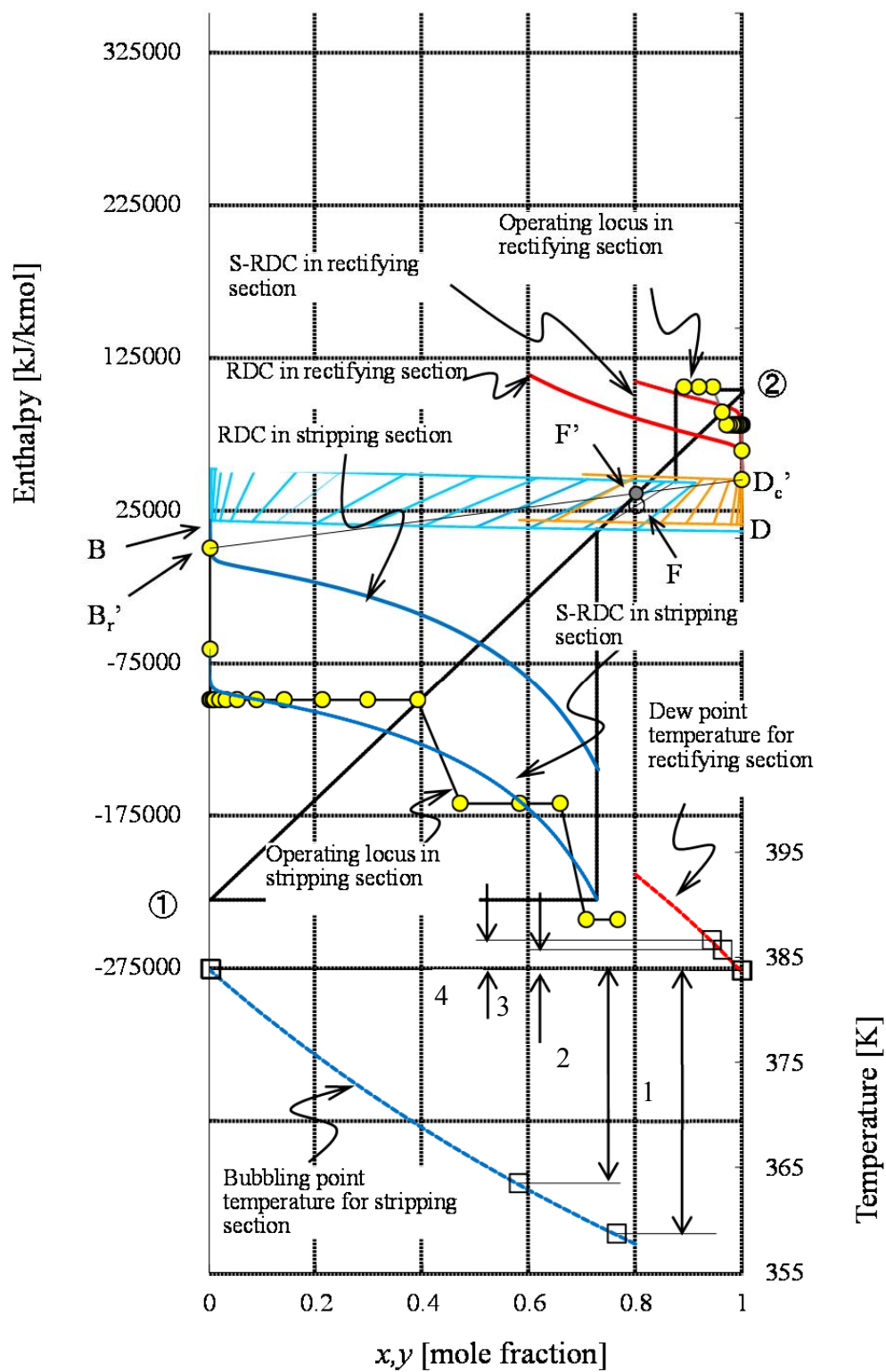
(a) Case 4-1 ( $z_F = 0.2$ )

**Fig. 4-1** 留出・缶出製品とも高純度まで分離する場合の原料組成の影響 (続く)



(b) Case 4-2 ( $z_F = 0.5$ )

**Fig. 4-1** 留出・缶出製品とも高純度まで分離する場合の原料組成の影響 (続く)



(c) Case 4-3 ( $z_F = 0.8$ )

Fig. 4-1 留出・缶出製品とも高純度まで分離する場合の原料組成の影響

**Table 4-2** 異なる原料組成・製品組成に対する検討結果

			Case 4-1 ( $z_F=0.2$ )	Case 4-2 ( $z_F=0.5$ )	Case 4-3 ( $z_F=0.8$ )	Case 4-4 ( $z_F=0.2$ )	Case 4-5 ( $z_F=0.5$ )
Reboiler duty, $Q_r$	[kW]		95	99	101	80	95
Compressor power, $W_s$	[kW]		209	217	221	175	208
Pressure in rectifying section, $P_R$	[kPa]		244.3	209.2	236.6	217.3	209.3
Side exchnager conditions							
Pairing, $k$	Serial No.1	[ - ]	R8-S5	R1-S1	R1-S2	R10-S3	R1-S1
	Serial No.2	[ - ]	R13-S18	R8-S4	R2-S5	R11-S5	R8-S3
	Serial No.3	[ - ]	R15-S19	R14-S17	R13-S17	R14-S6	R14-S8
	Serial No.4	[ - ]	R16-S20	R15-S18	R14-S18	R15-S7	R15-S10
Heat duty, $q_k$	Serial No.1	[kW]	161	426	421	192	420
	Serial No.2	[kW]	280	325	376	198	280
	Serial No.3	[kW]	314	370	186	298	425
	Serial No.4	[kW]	324	465	367	398	425
	Total	[kW]	1079	1586	1350	1086	1550
Inlet temp. difference	Serial No.1	[K]	8.0	13.0	25.0	10.8	11.3
	Serial No.2	[K]	19.6	8.1	20.3	12.7	9.8
	Serial No.3	[K]	24.6	7.9	1.9	21.6	11.0
	Serial No.4	[K]	26.6	11.1	2.7	23.3	12.3
Heat transfer area, $A_k$	Serial No.1	[m <sup>2</sup> ]	42.2	69.1	34.3	38.4	80.7
	Serial No.2	[m <sup>2</sup> ]	35.0	89.4	38.9	33.1	62.0
	Serial No.3	[m <sup>2</sup> ]	26.0	102.7	213	28.5	86.8
	Serial No.4	[m <sup>2</sup> ]	24.6	89.0	300	35.1	74.5
	Total	[m <sup>2</sup> ]	128	350	586	135	304

			Case 4-6 ( $z_F=0.8$ )	Case 4-7 ( $z_F=0.2$ )	Case 4-8 ( $z_F=0.5$ )	Case 4-9 ( $z_F=0.8$ )
Reboiler duty, $Q_r$	[kW]		99	95	95	89
Compressor power, $W_s$	[kW]		218	208	209	195
Pressure in rectifying section, $P_R$	[kPa]		239.1	247.7	217.4	259.4
Side exchnager conditions						
Pairing, $k$	Serial No.1	[ - ]	R1-S1	R6-S9	R1-S1	R1-S2
	Serial No.2	[ - ]	R2-S3	R8-S17	R5-S4	R2-S6
	Serial No.3	[ - ]	R10-S10	R10-S20	R8-S17	R3-S11
	Serial No.4	[ - ]	R18-S11	R11-S21	R9-S19	R4-S17
Heat duty, $q_k$	Serial No.1	[kW]	361	231	406	291
	Serial No.2	[kW]	381	278	306	200
	Serial No.3	[kW]	251	281	306	137
	Serial No.4	[kW]	311	250	426	354
	Total	[kW]	1304	1040	1443	982
Inlet temp. difference	Serial No.1	[K]	24.3	15.8	12.9	28.4
	Serial No.2	[K]	22.2	21.5	13.3	18.9
	Serial No.3	[K]	4.5	26.0	10.3	7.7
	Serial No.4	[K]	8.9	27.6	13.1	7.0
Heat transfer area, $A_k$	Serial No.1	[m <sup>2</sup> ]	29.2	30.9	68.7	21.0
	Serial No.2	[m <sup>2</sup> ]	35.7	26.7	50.3	22.2
	Serial No.3	[m <sup>2</sup> ]	126.0	22.0	62.9	37.1
	Serial No.4	[m <sup>2</sup> ]	76.3	18.2	68.2	106.5
	Total	[m <sup>2</sup> ]	267	98	250	187



る。そのためには、圧縮機動力を前もって与えた値より大きくする必要があり、省エネルギー性が下がる条件とならざるをえなくなる。逆に、全てのサイド熱交換器の温度差を 7 K よりも大きく設定できる場合は、濃縮部の操作圧力を低くすることが可能であり、その結果、省エネルギー率を上げることができる。実際に設計する際にはこのような検討が必要であるが、ここでは温度差の影響をサイド熱交換器の伝熱面積の増減として評価した。

Figure 4-1(a)―(c)に対応するケース 4-1 から 4-3 は、異なるフィード組成( $z_F = 0.2, 0.5, 0.8$ )を留出・缶出製品ともに高純度まで蒸留する( $x_D = 0.999, x_B = 0.001$ )場合である。他のケースと併せて Table 4-2 に HiDiC 化した際のリボイラー負荷、圧縮機動力、濃縮部圧力、各サイド熱交換器設置段の組合せ、熱負荷、入口温度差、および対数平均温度差に基づく必要伝熱面積を示した。なお、表中の  $Ri-Sj$  は濃縮部  $i$  段と回収部  $j$  段の間のサイド熱交換を意味する。得られるサイド熱交換器の入口温度差で最も小さい組合せ段の値に注目すると、 $z_F$  が大きいほど温度差は小さくなっている。 $z_F = 0.8$  ではこの温度差は 1.9 K で、目標となる 7 K に対して大きく下回っており、サイド熱交換器の伝熱面積が大きくなってしまう。以下に温度差が小さくなる理由を考察する。

まず、原料組成と製品純度から決定される、回収部・濃縮部にて取りえる温度領域に注目した。回収部の液組成、濃縮部のガス組成は、概ね原料が回収部操作圧力下でフラッシュした際の液組成とガス組成からそれぞれ缶出、留出製品にわたる組成領域を有する。したがって、回収部・濃縮部の温度領域はこの組成領域に対応したものとなる。例えば、Figure 4-1(a),(c)に示されるように、 $z_F = 0.2$  のケースでの回収部や  $z_F = 0.8$  のケースでの濃縮部では温度は狭い領域の値をとる。

次に全熱収支に注目した。本検討では、 $Q_T$  と  $W_S$  は HiDiC を設計する際に前提条件として設定されるため、 $B'_F$  点と  $F'$  点を与えられる。したがって、濃縮部の操作軌跡線の起点でもある  $D'_C$  点は、サイド熱交換の与え方とは無関係に決まる。ここで原料組成が全熱収支線に与える影響を考える。本検討では Figure 4-1(a)―(c)に示されるように、原料組成に関わらず  $B'_F$  点は、B 点と可逆蒸留線において組成変化に対するエンタルピー変化が急激に変わる領域の間に位置している。これは、リボイラー負荷を基準として省エネルギー性能を設定したためである。一方、濃縮部の操作軌跡線の起点である  $D'_C$  点の位置は、原料組成の影響を大きく受ける。これは、全熱収支線が原料組成に相当する  $F'$  点を通過するように与えられるためである。仮に  $W_S$  の設定を変更したとすると、線図上での F 点の変化量は  $W_S/F$  として与えられるため、原料組成の変化に比べて  $W_S$  の変化量が  $D'_C$  点の位置に与える影響は極めて限定的となる。 $z_F = 0.2$  の場合、全熱収支線の傾きは大きくなり、結果として  $D'_C$  点は濃縮部の可逆蒸留線から離れたところに位置する。一方  $z_F = 0.8$  の場合には、全熱収支線の傾きは小さくなるので、 $D'_C$  点は濃縮部可逆蒸留線のエンタルピー変化が急激に変わる領域よりも可逆蒸留線の起点に近いところに位置する。このように、リボイラー負荷を基準として省エネルギー性を与

える場合には、全収支線に注目することで、原料組成が濃縮部操作軌跡線の起点である $D'_c$ 点の位置に支配的な影響を及ぼすことを理解できる。

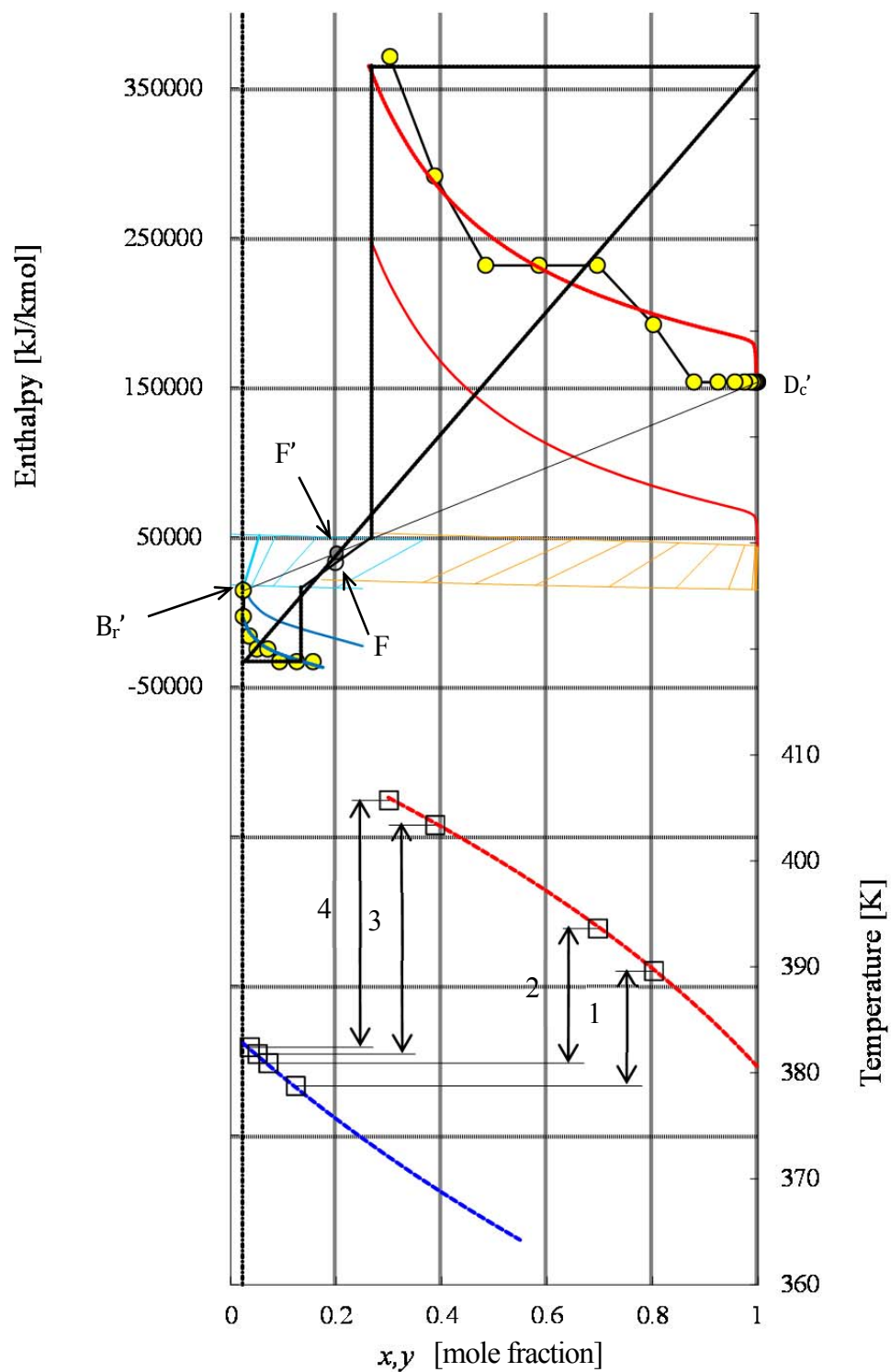
ここで先述した、原料組成が回収部・濃縮部の温度領域に与える影響と、 $D'_c$ 点の位置に与える影響をあわせて考察する。 $z_F=0.2$ の場合(Figure 4-1(a)参照), 濃縮部では、操作軌跡線の起点である $D'_c$ 点が可逆蒸留線から大きく離れたところに位置しているため、留出組成付近でサイド熱交換による追加的なエンタルピー変化を与えなくてもピンチ状態にならない。その結果、留出組成に相当する温度に比べて約3 K 高い温度に相当する組成付近に、サイド熱交換器 No.1 を設置することができる。更に、濃縮部の温度領域は広範にわたるため、No.2, 3, 4 のサイド熱交換器を高い温度レベルに設置することができる。この結果、回収部側（低温側）のサイド熱交換器は高い温度領域に設置されるものの、濃縮部側（高温側）でも十分な温度差を与えられる温度領域にサイド熱交換器を設置することが可能となり、全ての熱交換器で7 K 以上の温度差を得られる。

次に $z_F=0.8$ の場合(Figure 4-1(c)参照)は、濃縮部の温度領域が限定的なため、全てのサイド熱交換器を濃縮部塔頂組成付近の低い温度領域に設置しなくてはならない。一方で、回収部は広い温度領域をもつものの、 $B'_r$ 点がB点と可逆蒸留線のエンタルピー変化が急激に変化する領域の間に位置し、そのうえ操作軌跡線の基準となるシフト可逆蒸留線が可逆蒸留線から離れた位置にある。シフト可逆蒸留線位置は設定理論段数をみたとすように決められており、適宜変更することはできない。このため、サイド熱交換器 No.3, 4 を缶出組成付近に設置する必要がある。この結果、サイド熱交換器 No.3, 4 で十分な温度差を得られなくなる。

$z_F=0.5$ では(Figure 4-1(b)参照), 回収部・濃縮部側ともに同等の温度領域をもち、回収部側で可逆蒸留線のエンタルピー変化が急激に変化する領域に設置されるサイド熱交換器は、濃縮部側のピンチ状態を脱した組成域に設置されるサイド熱交換器と組み合わせられる。また逆に、濃縮部側でのピンチ領域に設置されるサイド熱交換器は、回収部側のピンチ状態から脱した組成域に設置されるサイド熱交換器と組み合わせられる。このため、いずれのサイド熱交換器においても十分な温度差が得られる。

異なる分離条件でも上述のことがあてはまることを、ケース 4-4 とケース 4-6 を用いて示す。すなわち、 $x_D=0.999$ ,  $x_B=0.025$  で  $z_F$  が 0.2 と 0.8 の場合である。Figure 4-2 にこれらの検討結果を提案する線図で示す。また、先に示したケース 4-1–4-3 以外の検討結果も Table 4-2 に既に示されている。 $z_F=0.8$ の場合（ケース 4-6）はケース 4-3 同様、濃縮部の温度範囲が限定的なため、サイド熱交換器 No.3, 4 でも温度が十分高い領域に位置していない。

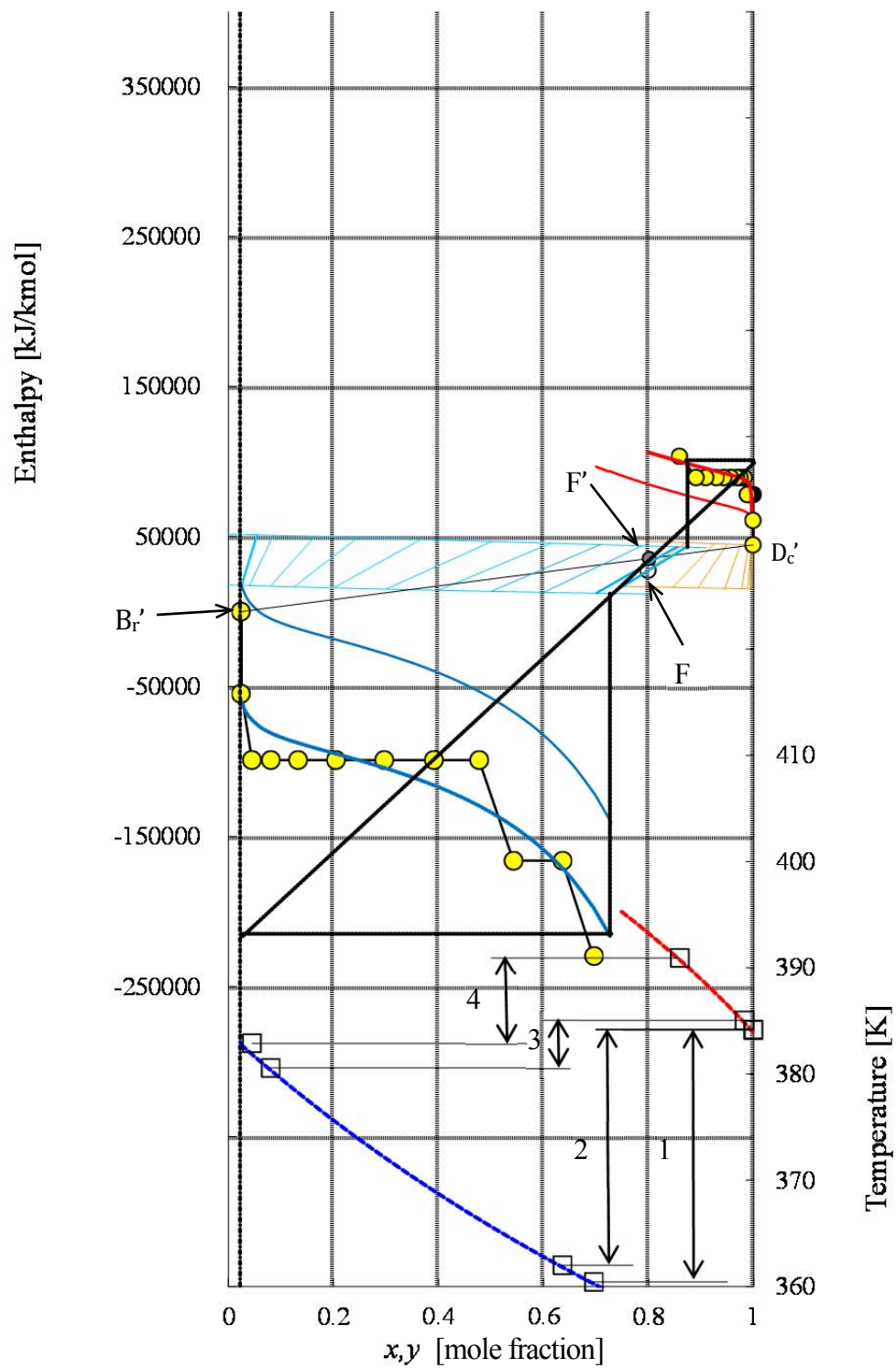
一方、回収部ではNo.3, 4 は缶出組成付近に設置する必要がある、結果的にこれらのサイド熱交換器では十分な温度差が得られない。 $z_F=0.2$ の場合（ケース 4-4）は、ケース 4-1 同様、濃縮部で $D'_c$ 点が



(a) Case 4-4 ( $z_F=0.2$ )

**Fig. 4-2** 留出製品を高純度まで分離し、缶出製品を低純度までの分離する場合の原料組成の影響

(続く)



(b) Case 4-6 ( $z_F=0.8$ )

**Fig. 4-2** 留出製品を高純度まで分離し、缶出製品を低純度までの分離する場合の原料組成の影響

可逆蒸留線より離れて位置できるため、サイド熱交換器 No.1 を留出組成よりも軽質成分濃度が低い組成領域に設置でき、最も温度差が小さいサイド熱交換器 No.1 でも十分な温度差を確保できる。このように、ケース 4-1-4-3 の比較で得られた傾向を再確認することができ、また同じ理論でこれを説明できる。

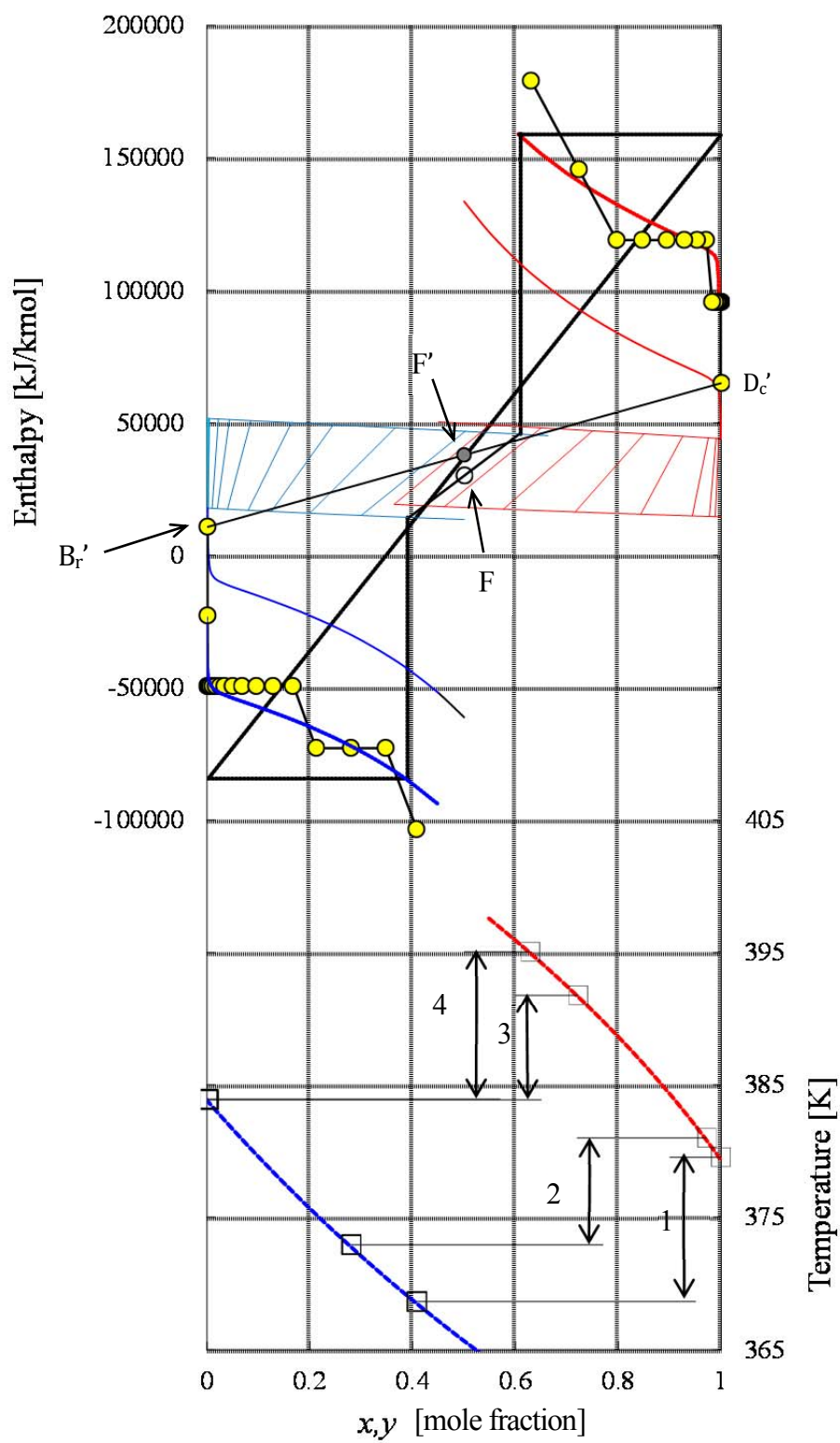
以上をまとめると、コンデンサー負荷を考慮した仮想状態  $D'_c$  が濃縮部可逆蒸留線に対して顕著にピンチ状態となり、濃縮部の組成、あるいは温度範囲が限定的な系、すなわち原料組成中の低沸成分が高濃度な系では、HIDiC の適性は低いといえる。しかし、これ以外の系では HIDiC の適性は十分高いといえる。

#### 4-3-2 製品純度の影響

次に HIDiC の適性を、製品純度（あるいは分離条件）を切り口に考える。同一の供給原料条件のもとで、製品純度を変えた場合の比較を行うため、例として原料条件が  $z_F = 0.5$  のケースを **Figures 4-3(a)–(c)** に示した。

Figure 4-3 の可逆蒸留線の形状を比較すると分かるように、製品純度が高い場合、製品組成付近で可逆蒸留線の組成に対するエンタルピー変化は大きくなる。つまり、高純度製品の場合の方が、組成・エンタルピーピンチを起こすポテンシャルが高くなる。特に、前項で指摘したように全熱収支上、 $D'_c$  点がピンチ状態になり易いため、留出製品が高純度になる場合にこの傾向が強い。逆に製品純度が低くなると、可逆蒸留線は製品付近でもなだらかに変化するため、Figure 4-3(c)における  $D'_c$  点、あるいは Figure 4-3(b)における  $B'_f$  点のように、ピンチ状態になっていないことが分かる。このような状態では、ピンチを避けるためにサイド熱交換器を製品付近の組成に設置しなくてもよい。ため、容易に温度差を確保できるようになる。Figure 4-3 中でも、留出・缶出製品ともに高純度まで分離している Figure 4-3(a)のサイド熱交換の最小温度差が 7.9 K だったのに対して、缶出製品の純度が低い場合 Figure 4-3(b)では 9.8 K、留出製品の純度が低い場合 Figure 4-3 (c)では 10.3 K となっている。

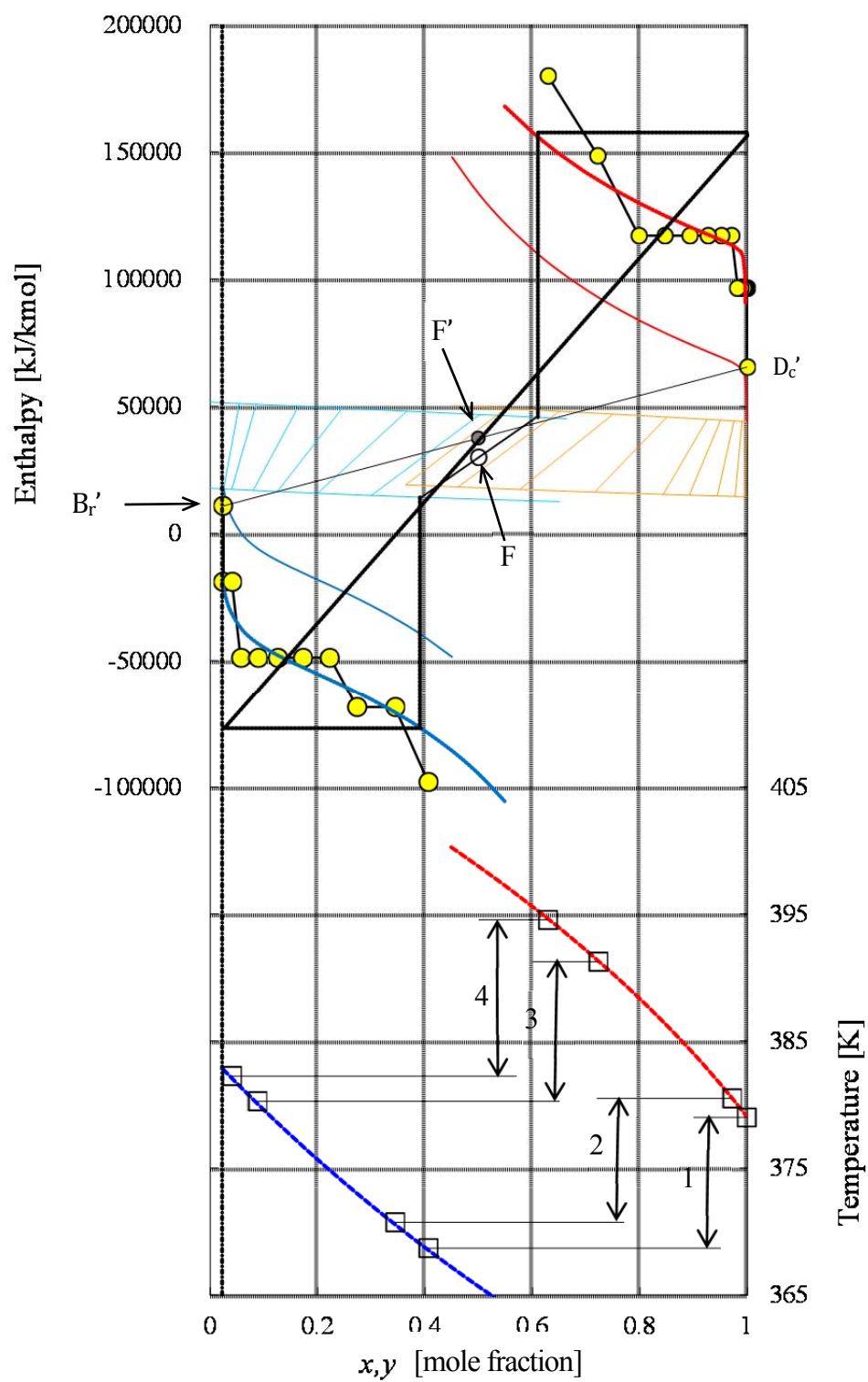
また、濃縮部の操作圧力もサイド熱交換器の温度差に影響を与えている。本検討においては先述のとおり、HIDiC を設計する前提条件としてリボイラー負荷  $Q_r$  と圧縮機動力  $W_s$  が与えられる。更に、基準となる従来型蒸留操作と同じ段数となるように理論段数を決めているため、操作変数は濃縮部の圧力と、各サイド熱交換器に与える熱量となる。サイド熱交換器に与える熱量は、操作軌跡線が可逆蒸留線を平行移動したように与えられる。製品が高純度の場合、製品に近い濃度領域では、可逆蒸留線において組成変化に対してエンタルピーが大きく変化するため、操作軌跡線はピンチにならないように、サイド熱交換による追加的なエンタルピー変化を相応に大きく与える必要がある。



(a) Case 4-2 ( $x_B=0.001, x_D=0.999$ )

**Fig. 4-3** 同じ原料組成( $z_F=0.5$ )における分離条件の影響

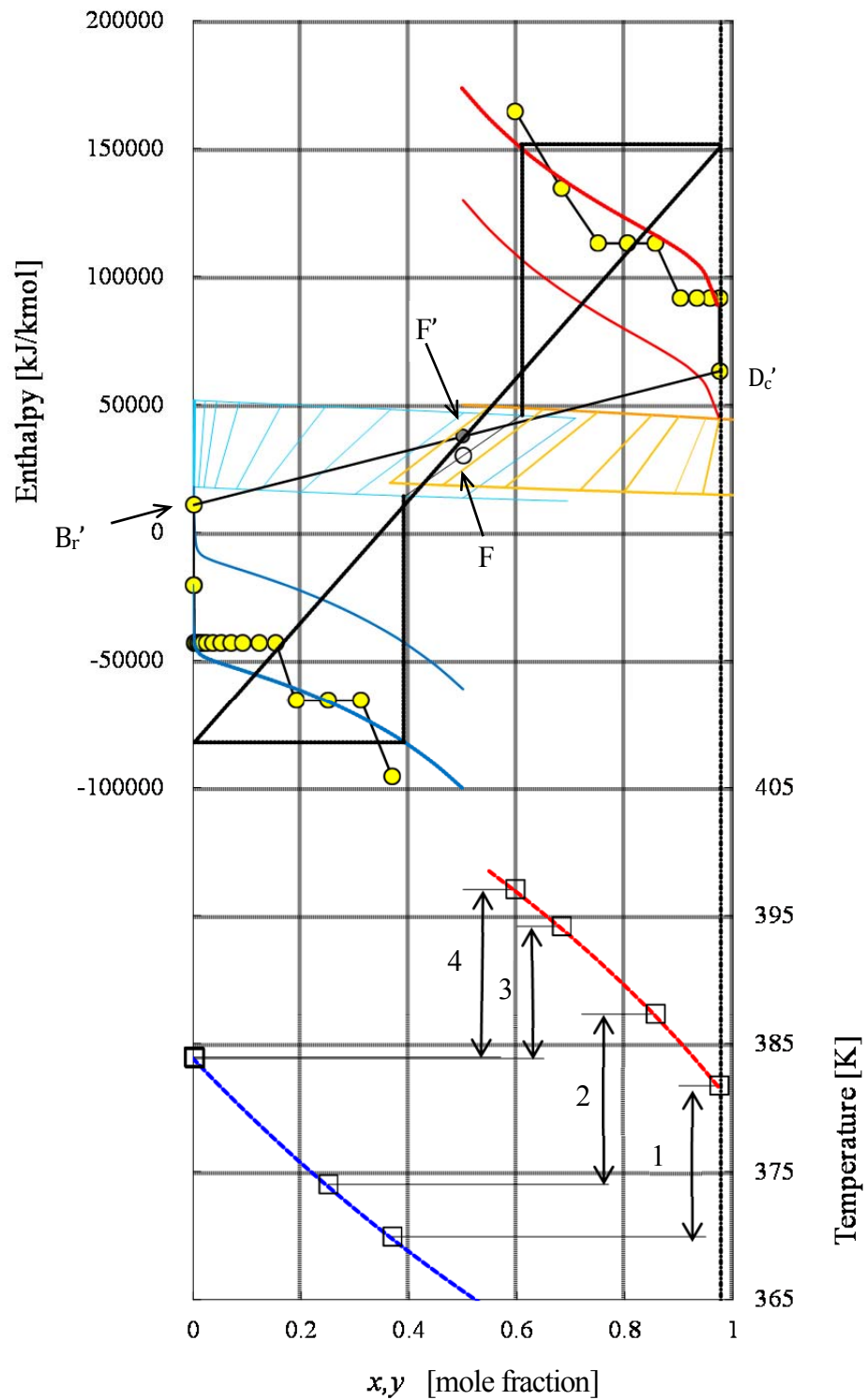
(続く)



(b) Case 4-5 ( $x_B=0.025, x_D=0.999$ )

**Fig. 4-3** 同じ原料組成( $z_F=0.5$ )における分離条件の影響

(続く)



(c) Case 4-8 ( $x_B=0.001, x_D=0.975$ )

**Fig. 4-3** 同じ原料組成( $z_F=0.5$ )における分離条件の影響



このため、与えられるサイド熱交換器の熱負荷は、製品が低純度の場合に比べて大きくなる傾向にある。特に $D'_c$ 点の位置がピンチになり易いため、留出製品の純度が与える影響が大きい。これは、ケース 4-2, 4-5, 4-8 の中で比較したときに、Table 4-2 に示したようにサイド熱交換量の合計値が、 $x_D=0.975$  に留めた分離をしているケース 4-8 で最も小さくなっていることから確認できる。サイド熱交換量が小さければ、圧縮機で処理されるガス流量は小さくなり、前もって圧縮機動力が与えられている条件下では、出口圧力が大きくなる。出口圧力は濃縮部操作圧力であるから、濃縮部は全体的に温度が高くなる。したがってこのようなケースでは、サイド熱交換の高温側温度が高くなる傾向になる。この結果、ケース 4-8 (Figure 4-3(c))では、同じ原料組成のなかでも、サイド熱交換器の温度差を得やすくなる。濃縮部操作圧力が直接的には温度差に影響を与えているが、これは製品純度により従属的に決まる因子であり、第一義的には製品純度による影響と考えて良く、留出製品の純度が低い場合は HIDiC の適性が上がると考えることができる。

以上、考察の結果を以下のようにまとめることができる。

- (1) 可逆蒸留線の形状が HIDiC の適性に大きな影響を及ぼす。同じ組成系でも、その形状は製品純度により大きく異なる。分離条件が留出・缶出製品ともに高純度な場合、濃縮部・回収部ともに製品付近で組成変化に対するエンタルピー変化が大きく表れるため、低純度の場合に比べてピンチになり易くなる。これを回避するため製品組成付近でサイド熱交換器を設置するため、温度差を確保しにくくなる。しかし、一方で製品純度が低くなると、低純度側でピンチを回避しやすくなり、製品組成付近に集中的にサイド熱交換器を設置せずに済むため、サイド熱交換器の温度差は容易に確保できるようになり HIDiC の適性は良好となる。
- (2) 分離条件が高純度の場合、サイド熱交換量が大きくなる傾向にあり塔内ガス量が増加し、圧縮機動力一定下では出口側圧力が小さくなる。これにより濃縮部と回収部の温度差が小さくなり、サイド熱交換の温度差が小さくなる傾向にある。本検討では、留出製品が高純度の場合にその傾向が顕著である。

#### 4-4 結言

$H$ - $xy$  線図と  $T$ - $xy$  線図を統合し、可逆蒸留線と操作軌跡線を示した線図を用いて、内部熱交換型蒸留塔 (HIDiC) の適用に関する適性を判断する手法を提案した。提案する線図を作成するための気液平衡関係、原料組成・液比、留出・缶出製品の純度が分かれば、省エネルギー性の観点から HIDiC の適性を判断できることを示した。

原料組成は、濃縮部の操作軌跡線の起点を決定する支配的な要因である。理想系であるベンゼン-トルエン系を対象とした検討から、コンデンサーの用役よりもリボイラーの用役を削減することが重要な場合には、軽質成分の濃度が低い方が相対的に HIDiC の適性が高いことを示した。一方、製品純度は、サイド熱交換を行う段の組合せ、圧縮比に影響を及ぼすが、留出・缶出製品のうち一方のみを高純度まで蒸留する場合は、両方の製品を高純度まで蒸留する場合に比べて HIDiC の適性が高いことを示した。これらを組み合わせて考えたとき、ともに HIDiC の適性が低くなる要因が重なる場合、すなわちフィード組成中の軽質成分の濃度が高く、留出・缶出製品がともに高純度まで分離する蒸留では HIDiC の適性が低くなる。しかし、この条件以外では HIDiC の適性は高いと考えられる。

以上で得たことは、共沸を持たない非理想系にも適用できる。これは非理想系の非理想性は、気液平衡関係とその気液のエンタルピー差に表れるため、可逆蒸留線にそれらの影響が集約されて表現されるためである。すなわち、理想系の検討で得られた結論で、可逆蒸留線をもとに製品純度の高低を分離の難しさの難易と置き換えれば、同じような適性判断を行なうことができる。また、本研究で適用した線図は非共沸多成分系にも拡張可能と考えられる。この場合、前章で示したように、従来型蒸留操作で蒸留計算を解き、分離の軽質キー成分よりも沸点の低い成分を擬似的な軽質成分、重質キー成分よりも沸点の高い成分を擬似的な重質成分と見做して、各段での気液平衡関係、気液各相のエンタルピーおよび温度を得れば、提案する線図を描くことができる。但し、これらについては、今後の研究で十分な検証が必要である。

#### 4-5 記号

$B$	bottoms flow rate	[kmol/h]
$D$	distillate flow rate	[kmol/h]
$F$	feed flow rate	[kmol/h]
$H$	enthalpy in liquid phase per unit molar rate	[kJ/kmol]
$h$	enthalpy in vapor phase per unit molar rate	[kJ/kmol]
$L$	liquid molar flow rate	[kmol/h]
$P$	pressure	[kPa]
$N$	number of theoretical stages	[-]
$Q_r$	reboiler duty in HIDiC system	[kW]
$Q_{r\text{-conv}}$	reboiler duty in conventional distillation system	[kW]

$q$	heat duty of side exchanger	[kW]
$T$	temperature in rectifying section	[K]
$t$	temperature in stripping section	[K]
$V$	vapor molar flow rate	[kmol/h]
$W_s$	compressor shaft power	[kW]
$x$	liquid molar fraction of light component	[ - ]
$y$	vapor molar fraction of light component	[ - ]
$z$	molar fraction of light component in mixed phase feed [ - ]	
(Subscript)		
$i$	arbitrary stage in rectifying section	
$j$	arbitrary stage in stripping section	
R	rectifying section	
r	reboiler	
Ref	reflux	
S	stripping section	

#### 4-6 参考文献

- 1) Mah, R.S.H., J.J.Nocholas, Jr. and R.B.Wodnik, "Distillation with Secondary Reflux and Vaporization: A Comparative Evaluation," *AIChE J.*, **23**, 651-658 (1977)
- 2) Iuchi, K., M. Nakaiwa and H. Tatsumi, "Application of Internally Heat Integrated Type Energy Saving Distillation Column (HIDiC)," Society of Chemical Engineers, Japan (SCEJ) 36<sup>th</sup> Autumn Meeting, **B1P03**, Sendai, Japan (2003)

## 第5章 新型内部熱交換型蒸留塔の提案

### 5-1 離散的で限られた段間で熱交換を行う内部熱交換型蒸留塔構造の提案

本論文研究を通して、離散的で限られた段間でサイド熱交換を行う HIDiC が、これまで開発されてきた同心円型構造のように、濃縮部と回収部を並列に設置した際に隣り合う段間で熱交換を行う HIDiC よりも優れた省エネルギー性能を得られる可能性があることを示した。このような HIDiC を実現すれば、我が国のみならず世界の省エネルギーに貢献できるものと考えられる。その際には、1章でも述べた下記のような、これまで開発されてきた HIDiC の欠点を解決できる構造が望ましい。

- (i) 製品をサイドカットして取り出すことができず、適用可能なプロセススキームに制限がある
- (ii) メンテナンスが困難である
- (iii) 特殊構造となり機器コストが高い

これらに加えて、本研究で提案したサイド熱交換配置は、各サイド熱交換器に熱力学的に適切な負荷を適切な段の組合せ対して与えるため、同心円型二重管構造の HIDiC のように塔内部品の仕様が決定されると、伝熱面積が自ずと決定されてしまうような構造では、提案するサイド熱交換配置を実現することはできない。

できるだけシンプルな構造で、以上に述べた課題を解決することが可能な、新しいサイド熱交換配置を有する HIDiC を実現する例として **Figure 5-1** に示す構造が考えられる<sup>1)</sup>。この構造の特徴は以下のような点である。

- サイド熱交換をスタブドイン型熱交換器で行う。スタブドイン型熱交換器とは、工業的にひろく用いられている多管式熱交換器のチューブバンドルを塔に挿入するような形式の熱交換器である。
  - 回収部を濃縮部よりも高い位置に設置する（スタック形式としても、並列形式としても可）。
  - 塔内部品には、通常の蒸留塔で用いられるものと全く同じ形式のトレイや充填物を用いる。
- このような構造とすることで、上述の課題をそれぞれ以下のように解決することが可能である。
- ✓ スタブドイン型熱交換器は、蒸留塔の任意の段に設置することが可能である。いま、濃縮部の任意の段にサイド熱交換器を設置し、この段と熱交換させたい回収部側の段の流体をチューブ側に接続すれば、これらの段間で熱交換を行うことが可能となる。すなわち、本論文研究において提案した手法により決定された回収部と濃縮部の段間でのサイド熱交換を、何ら制約をうけることなく実現できる。

更に、伝熱面積を単独で設計変数とすることが可能であり、装置設計を行なう際には、伝熱面積を調整することで熱交換量を個別に設定することが可能である。

- ✓ スタブドイン型熱交換器を用いてサイド熱交換を行う際に、回収部（低温側）を濃縮部（高温側）よりも上に設置し、熱交換器を濃縮部に設置することで、自然循環（サーモサイフォン効果）により熱交換を行うことができる。あるいは、圧縮機出口ガスや、濃縮部塔頂ガスでサイド熱交換を行う際には、回収部にスタブドイン型熱交換器を設置すれば、供給された高温側のガスが凝縮し、重力により所定の段や槽に戻すことが可能となる。
- ✓ スタブドイン型熱交換器は工業的に比較的ひろく用いられており、総括伝熱係数を高精度で推算することが可能である。

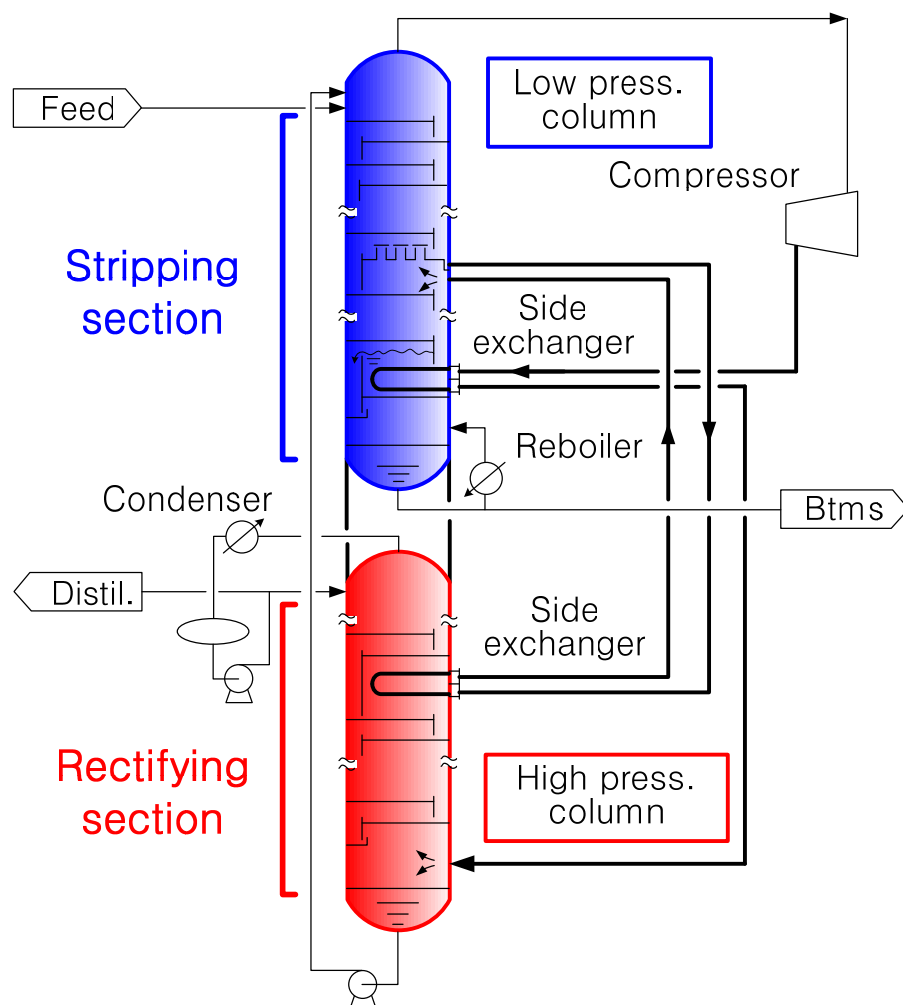


Fig. 5-1 新型HIDiC 概略プロセスフロー図

- ✓ 通常のトレイや充填物を用いる蒸留塔構造のため、通常の蒸留塔で行う製品のサイドカットにも対応可能である。
- ✓ 通常のトレイや充填物を用いる蒸留塔構造のため、通常の蒸留塔と同様にメンテナンスを行うことができる。
- ✓ 蒸留、熱交換を行う部位が特殊構造とならないため、装置コストを安価におさえることが可能である。

Figure 5-1 に関連した特許では、限られた熱交換器数でサイド熱交換を行うことは述べられているものの、本研究で得られた以下の点については検討されておらず、本研究によりこれらの点が検討された意義は大きい。

- サイド熱交換器を設置する段（組成）をどのように決定するか
- サイド熱交換器の熱負荷をどのように与えればよいか
- サイド熱交換器を設置する段の組合せをどのように決定するか
- どのような蒸留塔（系）に対して適用することが適切か

## 5-2 提案する新内部熱交換型蒸留塔システムのケーススタディー

本項ではケーススタディーを通して、前項で提案した新構造 HIDiC の経済性を検証した。ケーススタディーで用いた検討条件を Table 5-1 に示す。本条件は、3 章で提案した離散的に限られた段間でサイド熱交換を行う HIDiC の設計手法が、多成分系にも拡張できることを確認するために用いた検討条件（ケース 3）で、塔内・コンデンサー・リボイラーでの圧力損失を工業的な蒸留塔を設計する際に用いる値とし、さらに原料流量を  $1/18 \text{ kmol/s}$  ( $= 200 \text{ kmol/h}$ ) としたものである。したがって、本ケーススタディーは実際の蒸留塔の設計を行なう作業と等価である。

原料流量については、内部熱交換を行うために設置するスタブドイン型熱交換器が、トレイあるいは充填物のハイドロリクスで決定される塔径に対して、余裕を持って設置できるように設定した。サイド熱交換器における総括伝熱係数は、濃縮部気相部にチューブバンドルが挿入される形態となる場合には  $0.5 \text{ kW/(m}^2\text{K)}$ 、回収部液相部にチューブバンドルが挿入される形態となる場合は  $0.65 \text{ kW/(m}^2\text{K)}$  を想定した。更に、サイド熱交換器の伝熱面積の算出に際しては、サーモサイフォン型で熱交換を行う形態（濃縮部気相部にバンドルが挿入される形態）では、流体の自然循環を確保するため、熱交換器入口に液ヘッドを確保する必要がある。このため、液ヘッド分沸点が上昇するが、ここでは  $2 \text{ K}$  上昇するものと仮定した。

原料組成（液相）の平衡関係に相当する気相組成を、断熱効率 75%で圧縮すると出口では一部のガスが凝縮する。本システムにおける圧縮機は、第 1 章で述べたパイロットプラントでもターボ式遠心型圧縮機を用いており、本検討でも同タイプの圧縮機を想定する。ターボ式遠心型圧縮機では、工業的には入口あるいは圧縮工程で凝縮液を含んだ湿ったガスを処理すると、振動やエロージョンを起こす可能性があると考え、このような場合には入口ガスを過飽和状態としている。このため、本検討においては圧縮機プレヒーターを設置するものとした。プレヒーターで約 5 kPa の圧力損失

**Table 5-1** 新構造 HIDiC ケーススタディー検討対象プロセス条件

		Case 5
Feed rate	[kmol/s]	1/18
Feed composition	[mol %]	
Toluene		0.5
Ethylbenzene		10.0
p-Xylene		11.0
m-Xylene		25.0
o-Xylene		14.5
Cumene		1.0
n-Propylbenzene		2.2
m-Ethyltoluene		15.8
1,2,4 Trimethylbenzene		20.0
Liquid molar fraction in feed	[ - ]	1
Separation specifications		
C9 aromatics in distillate	[mol %]	0.7
C8 aromatics in bottoms	[mol %]	1.5
Number of theoretical stages		
Rectifying section (incl. condenser)	[ - ]	30
Stripping section (incl. reboiler)	[ - ]	25
Overall heat transfer coefficient		
Tube bundle in vapor space	[kW/(m <sup>2</sup> K)]	0.50
Tube bundle in liquid pool	[kW/(m <sup>2</sup> K)]	0.65
Compressor shaft power	[kW]	dependent on target energy saving
Column internals		
Type	[ - ]	3rd generation random packing (IMTP #15 or equivalent)
HETP	[m]	0.35
Pressure drop		
Theoretical stages	[kPa/stage]	0.22
Condenser	[kPa]	50.0
Reboiler	[kPa]	0.05
Pressure		
Rectifying section	[kPa]	variable
Stripping section	[kPa]	106.3

が発生するため、圧縮機入口を 101.3 kPa とし回収部の操作圧力は 106.3 kPa に設定した。プレヒーターは、高圧・高温で稼働する濃縮部から低圧・低温の回収部にリサイクルされる液を熱源として用い、外部用役は用いずに設計できる。なお、3-4 節における検討では、当該プレヒーターは、系内のストリーム間で蒸留塔塔内のエンタルピー挙動に影響を及ぼさないように熱交換を行うため、フロー図(Figure 3-15)には記載していない。

次に蒸留塔内部品については、提案する新構造 HiDiC ではトレイと充填物のうち、いずれも通常蒸留塔に用いている製品をそのまま流用することができるが、ここでは不規則充填物を想定した。具体的には第 3 世代不規則充填物で最も標準的に使われている Intalox Metal Tower Packing® (IMTP®) 相当品を想定し、サイズは #15 とした。分離効率(HETP)については、本系と類似した系で標準的に用いられる 350mm を想定した。

まず、検討対象系に対して還流槽圧力が 101.3 kPa でコンデンサー、充填物、リボイラーの圧力損失を検討条件と同様にそれぞれ 50 kPa, 0.22 kPa/stage, 0.05 kPa とし、設定された理論段数を有する従来型蒸留塔を設計すると、そのリボイラー負荷  $Q_{r\text{-conv}}$  は 4.78 MW となる。これを 3-4 節の検討で得られたサイド熱交換器の組合せで、各サイド熱交換器の熱交換量を原料流量同様に 3-4 節の場合の約 2 倍として HiDiC を設計した。検討結果は Figure 5-2, Table 5-2 に示す通りとなる。前章まで

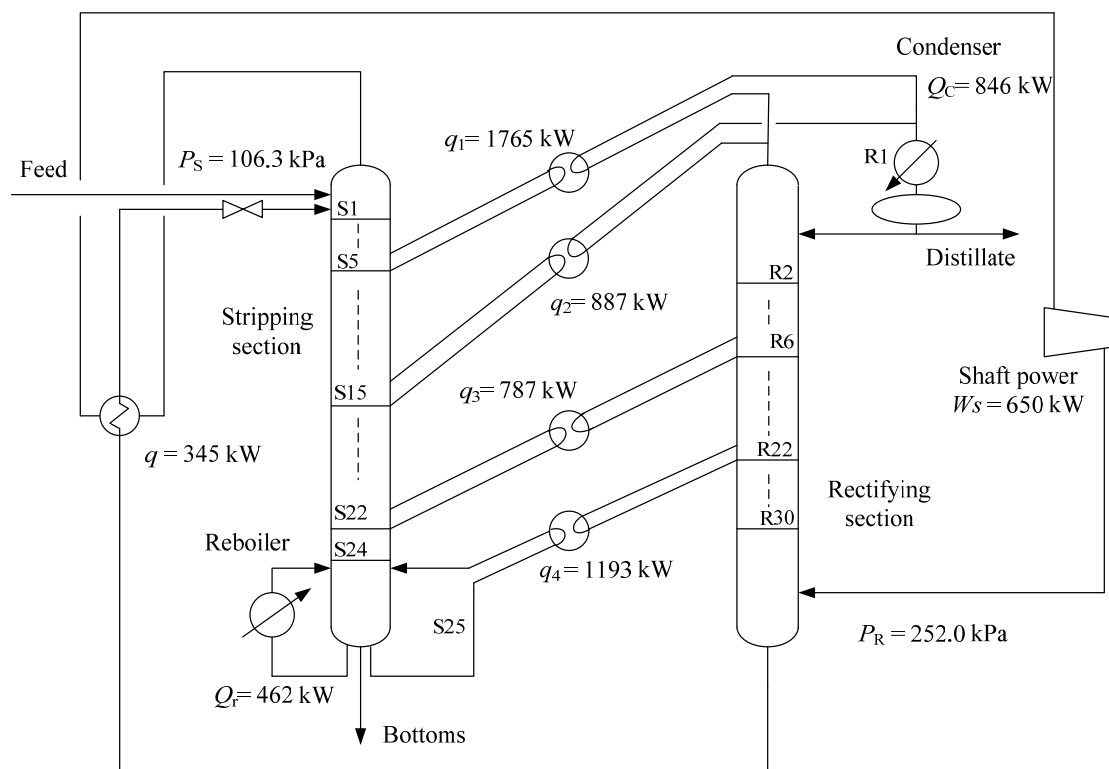


Fig. 5-2 提案する新構造 HiDiC のサイド熱交換方法 (ケース 5)



**Table 5-2** 提案する新構造 HIDiC —検討結果(ケース 5)

Reboiler duty, $Q_r$	[kW]	462
Compressor power, $W_s$	[kW]	650
Operating pressure in rectifying section at top/bottom, $P_R$	[kPa]	245.9 / 252.1
Side exchanger conditions		
Combination	Duty, $q_k$	Inlet temperature difference
		Heat transfer area
[ — ]	[kW]	[K]
		[m <sup>2</sup> ]
No.1	S5-R1	1765
No.2	S15-R1	887
No.3	S22-R6	787
No.4	S25-R22	1193
		24.0
		14.6
		10.8
		11.9
		151
		164
		182
		250

と同様に、リボイラー負荷  $Q_r$  と圧縮機動力  $W_s$  から省エネルギー性能を評価する。HIDiC におけるエネルギー消費量は、 $Q_r=462$  kW に  $W_s=650$  kW を発電効率 36.6 % で一次エネルギー量に換算した 1776 kW (= 650/0.366) の合計である 2238 kW となり、同理論段数の従来型蒸留操作におけるリボイラー負荷 4781 kW に対して、53% の消費エネルギー削減となる。これは、3-4 節で設定した省エネルギー性 50% と極めて一致している。

本検討では、提案する新構造の HIDiC の経済性を可能な限り正確に評価するため、システムを構成する建設のための総コスト(Grassroots cost)を算出し<sup>2)</sup>、用役費についてもリボイラー・圧縮機の消費エネルギーのみならず、装置上必要となるポンプなどの用役費も考慮して、経済性評価を行った。但し、コンデンサーで発生するスチームについては、コンデンサーをエアフィンクーラー等に代替することも可能なため、運転費には算入していない。

まず、提案する新構造の HIDiC システムを構成する機器を全て記載した概略フロー図と機器リストを **Figure 5-3**, **Table 5-3** に示す。比較対象となる従来型蒸留システムの機器リストも **Table 5-4** に示す。表中には、機器コストを算出するための基準となる情報を機器毎に記載している。図表に示さるよう、新構造の HIDiC システムでは通常の従来型蒸留システムでは不要な、以下のような機器が必要と考えられる。

- C-101      HIDiC compressor
- E-101      Side exchanger No.1

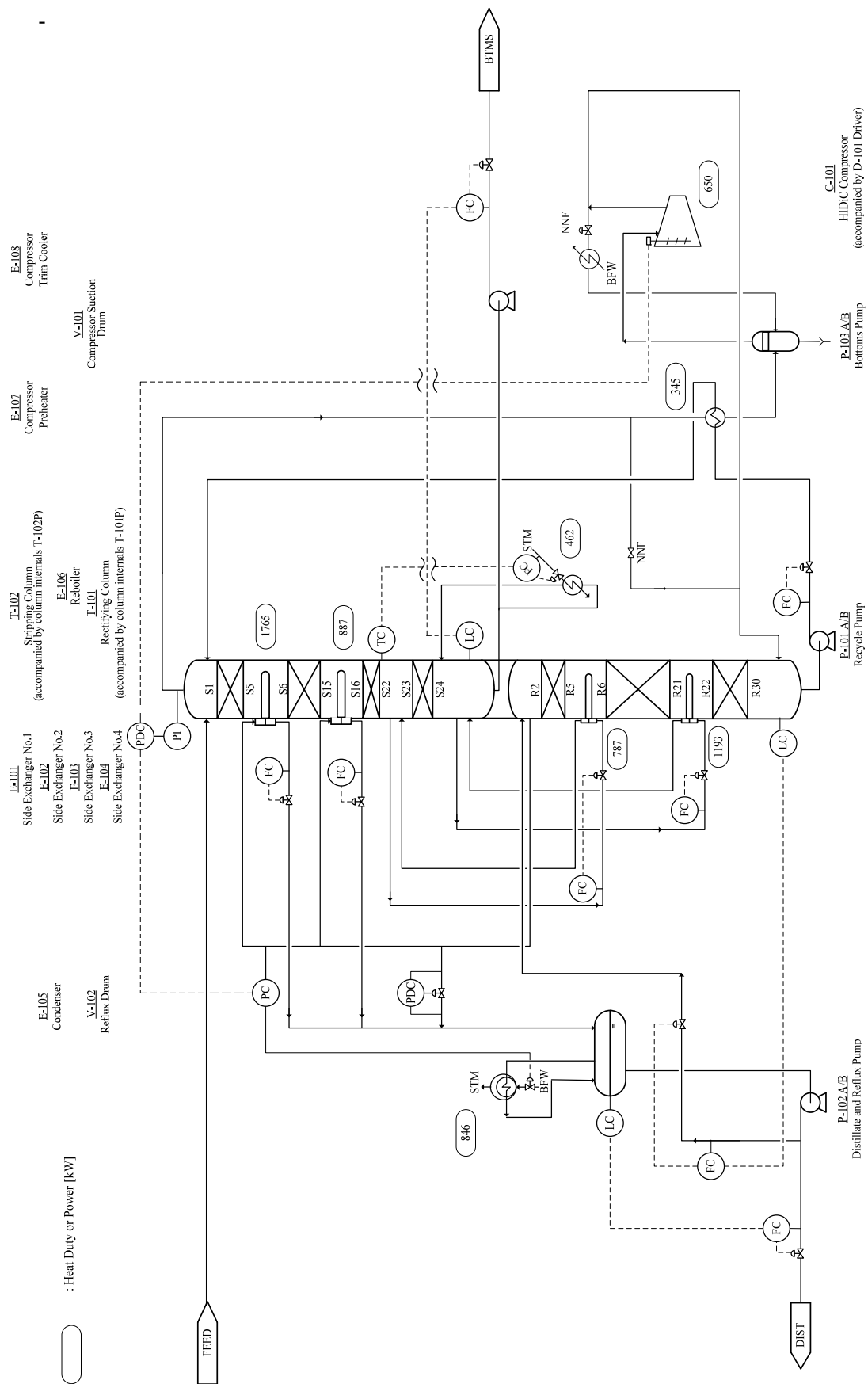


Figure 5-3 プロセスフロー図—新構造HIDiCシステム

**Table 5-3** 機器リスト—新構造 HIDI C システム

Type of equipment	item No.	Service description	Specifications for cost estimation		Material	Remarks
			Parameter	Unit		
Column	T-101	Rectifying column	Column diameter	[mm]	2,400	KCS
			Column Height	[mm]	22,920	KCS
	T-102	Stripping column	Column diameter	[mm]	2,400	KCS
			Column Height	[mm]	23,610	KCS
Column internals	T-101P	Ramdom packing for T-101	Total bed height	[mm]	10,150	304 SS Packing type to be IMTP #15 or equivalent
	T-102P	Ramdom packing for T-102	Total bed height	[mm]	8,400	304 SS Packing type to be IMTP #15 or equivalent
Compressor	C-101	HIDI C compressor	Power	[kW]	650	CS Centrifugal
	D-101	Compressor driver	Power	[kW]	650	— Motor
Heat exchanger	E-101	Side exchanger No.1	Heat transfer area	[m <sup>2</sup> ]	151	KCS Stabbed-in
	E-102	Side exchanger No.2	Heat transfer area	[m <sup>2</sup> ]	164	KCS Stabbed-in
	E-103	Side exchanger No.3	Heat transfer area	[m <sup>2</sup> ]	182	KCS Stabbed-in
	E-104	Side exchanger No.4	Heat transfer area	[m <sup>2</sup> ]	250	KCS Stabbed-in
	E-105	Condenser	Heat transfer area	[m <sup>2</sup> ]	160	Fixed type shell and tube type. Duty to have 30% of conventional distillation case in consideration of start-up operation.
	E-106	Reboiler	Heat transfer area	[m <sup>2</sup> ]	160	Fixed type shell and tube type. Duty to have 30% of conventional distillation case in consideration of start-up operation.
	E-107	Compressor preheater	Heat transfer area	[m <sup>2</sup> ]	50	KCS Fixed type shell and tube type
	E-108	Compressor trim cooler	Heat transfer area	[m <sup>2</sup> ]	8	KCS Fixed type shell and tube type
Vessel	V-101	Compressor suction drum	Vessel diameter	[mm]	2,400	KCS Vertical vessel equipped with demister (304 SS)
			Vessel height	[mm]	4,000	KCS
	V-102	Reflux drum	Vessel diameter	[mm]	1,200	KCS Horizontal vessel
			Vessel length	[mm]	3,600	KCS
Pump	P-101	Recycle pump	Power	[kW]	5	CS Including 1 spare pump
	P-102	Distillate and reflux pump	Power	[kW]	7	CS Including 1 spare pump
	P-103	Bottoms pump	Power	[kW]	3	CS Including 1 spare pump

**Table 5-4** 機器リストー従来型蒸留塔システム

Type of equipment	item No.	Service description	Specifications for cost estimation			Material	Remarks
			Parameter	Unit			
Column	T-201	Conventional fractionator	Column diameter	[mm]	2,300	KCS	
			Column Height	[mm]	30,000	KCS	
Column internals	T-201P	Random packing for T-201	Total bed height	[mm]	18,550	304 SS	Packing type to be IMTP #15 or equivalent
Heat exchanger	E-201	Condenser	Heat transfer area	[m <sup>2</sup> ]	533	KCS	Fixed type shell and tube type
	E-202	Reboiler	Heat transfer area	[m <sup>2</sup> ]	533	KCS	Fixed type shell and tube type
Vessel	V-201	Reflux drum	Vessel diameter	[mm]	1,300	KCS	
			Vessel height	[mm]	3,900	KCS	
Pump	P-201	Distillate and reflux pump	Power	[kW]	10	CS	Including 1 spare pump
	P-202	Bottoms pump	Power	[kW]	2	CS	Including 1 spare pump

- E-102      Side exchanger No.2
- E-103      Side exchanger No.3
- E-104      Side exchanger No.4
- E-107      Compressor preheater
- E-108      Compressor trim cooler
- V-101      Compressor suction drum
- P-101      Recycle pump

ここで V-101 は、蒸留塔がフラッディングを起こした際に、圧縮機に液が直接持ち込まれないよう、バッファーとして機能するよう設置している槽である。また、スタートアップ運転の際に圧縮機のサージングを避けるため、スピルバックラインを設置して圧縮機へのガス供給量を確保するが、圧縮機出口側のガスを入口にリサイクルさせるため、このラインを用いるような運転では圧縮機周りのストリームの温度が上昇してしまう。このため、熱を系外に逃がすためトリムクーラー E-108 を設置している。

一方、次の機器に関しては、従来型蒸留システムよりも小規模となる。

E-105   Condenser

E-106   Reboiler

V-102   Reflux drum

P-101   Recycle pump

E-105, E-106 については、省エネルギー化により還流量（コンデンサー負荷）、リボイラー負荷が大きく低減されるため小型化できる。ただし、スタートアップ運転を考慮して、当該伝熱面積は、従来型蒸留塔のコンデンサー・リボイラー負荷の 30% に相当する負荷を処理できるよう設定した。

以上のようにして、算出された新構造 HIDiC と従来型蒸留の装置建設コストを **Table 5-5** に示す。装置コストおよび総投資コスト(grassroots cost)は、Turton ら<sup>2)</sup>の手法を用いて算出した。この際、コストデータの基準から現在貨幣価値へのスライドには CEPCI(Chemical Engineering Plant Cost Index) 573 を用いた。また、HIDiC による省エネルギー化により、投資コスト回収の源泉となるのは従来型蒸留塔に対する用役費の差額であるが、用役費の算出に際してはプラントの年間稼働時間を 8000 h とし、リボイラー熱源の中圧スチームと圧縮機・ポンプの駆動電力のみを考慮した。またこれらの用役単価は、13K スチーム(飽和圧力 1400 kPa)を JPY 3,000/ton, 電気費を JPY 12/(kW h)と設定した。用役費に関する新構造 HIDiC と従来型蒸留塔の比較を **Table 5-6** に示す。

**Table 5-5** 投資コスト(Grassroots cost)

(a) 新構造 HIDiC

Type of equipment	item No.	Service description	Purchased equip. cost $C_P^0$ [JPY x 10 <sup>3</sup> ]	Bare module cost $C_{BM}$ [JPY x 10 <sup>3</sup> ]	Grassroots cost $C_{GR}$ [JPY x 10 <sup>3</sup> ]
Column	T-101	Rectifying column	23,000	57,200	89,000
	T-102	Stripping column	20,500	51,800	82,000
Column internals	T-101P	Random packing for T-101	incl. in the cost for column		
	T-102P	Random packing for T-102	incl. in the cost for column		
Compressor	C-101	HIDiC compressor	29,000	79,500	134,000
	D-101	Compressor driver	15,400	23,200	38,900
Heat exchanger	E-101	Side exchanger No.1	3,980	13,100	22,000
	E-102	Side exchanger No.2	4,120	13,500	22,800
	E-103	Side exchanger No.3	4,300	14,200	23,800
	E-104	Side exchanger No.4	4,980	16,400	27,500
	E-105	Condenser	4,070	13,400	22,500
	E-106	Reboiler	4,070	13,900	23,100
	E-107	Compressor preheater	2,760	9,080	15,300
	E-108	Compressor trim cooler	2,210	7,270	12,200
Vessel	V-101	Compressor suction drum	3,180	11,000	18,000
	V-102	Reflux drum	954	2,870	4,830
Pump	P-101	Recycle pump	897	2,906	4,881
	P-102	Distillate and reflux pump	1,006	3,261	5,478
	P-103	Bottoms pump	775	2,510	4,217
Total bare module cost			[JPY x 10 <sup>3</sup> ]	335,096	—
Total grassroots cost, $C_{GR}$			[JPY x 10 <sup>3</sup> ]	—	550,506

(b) 従来型蒸留塔

Type of equipment	item No.	Service description	Purchased equip. cost $C_P^0$ [JPY x 10 <sup>3</sup> ]	Bare module cost $C_{BM}$ [JPY x 10 <sup>3</sup> ]	Grassroots cost $C_{GR}$ [JPY x 10 <sup>3</sup> ]
Column	T-201	Conventional fractionator	32,500	68,400	105,000
Column internals	T-201P	Random packing for T-201	incl. in the cost for column		
Heat exchanger	E-201	Condenser	7,470	24,600	41,300
	E-202	Reboiler	7,470	25,500	42,300
Vessel	V-201	Reflux drum	1,080	3,240	5,440
Pump	P-201	Distillate and reflux pump	1,125	3,646	6,125
	P-202	Bottoms pump	760	2,463	4,138
Total bare module cost			[JPY x 10 <sup>3</sup> ]	127,849	—
Total grassroots cost, $C_{GR}$			[JPY x 10 <sup>3</sup> ]	—	204,303

**Difference of grassroots cost**

$$(\text{HIDiC system}) - (\text{Conventional system}) = 346,203 \quad [\text{JPY x } 10^3]$$

Table 5-6 用役費比較

Plant annual operation time	[h]	8,000
Utility unit rate		
Steam (13K)	[JPY/ton]	3,000
Electricity	[JPY/(kW h)]	12
Utility consumption		
New HiDiC case		
Reboiler duty	[MW]	0.46
Steam consumption	[kg/h]	848
Shaft power		
Compressor	[kW]	650
Pumps	[kW]	15
Cost for steam	[JPY/yr x 10 <sup>3</sup> ]	20,352
Cost for electricity	[JPY/yr x 10 <sup>3</sup> ]	63,840
<b>Total utility cost</b>	<b>[JPY/yr x 10<sup>3</sup>]</b>	<b>84,192</b>
Conventional distillation case		
Reboiler duty	[MW]	4.78
Steam consumption	[kg/h]	8,787
Shaft power		
Pumps	[kW]	12
Cost for steam	[JPY/yr x 10 <sup>3</sup> ]	210,888
Cost for electricity	[JPY/yr x 10 <sup>3</sup> ]	1,152
<b>Total utility cost</b>	<b>[JPY/yr x 10<sup>3</sup>]</b>	<b>212,040</b>

これらの結果から、本検討ケースにおける新構造HiDiCの従来型蒸留塔との投資コストの差額は、 $550,506 \times 10^3 - 204,303 \times 10^3 = 346,203 \times 10^3$  円となる。一方で、用役費の差額は、 $212,040 \times 10^3 - 84,192 \times 10^3 = 127,848 \times 10^3$  円となる。したがって、貨幣価値の変動を考慮しない単純投資回収年数は、2.71 年となり、省エネルギーに関する一般的な投資回収年数の基準である約 3 年に対して十分合致する年数となる。したがって、提案する新構造 HiDiC は経済性の面からも工業界で受け入れられる可能性が高いと考えられる。

### 5-3 記号

$P$	pressure	[kPa]
$Q_r$	reboiler duty in HiDiC system	[kW]

$Q_{r\text{-conv}}$	reboiler duty in conventional distillation system	[kW]
$q$	heat duty of side exchanger	[kW]
$W_s$	compressor shaft power	[kW]
(Subscript)		
$k$	serial number of side exchangers	
R	rectifying section	
r	reboiler	

#### 5-4 参考文献

- 1) 特許第 4803470 号「熱交換型蒸留装置」(2011)
- 2) Turton, R., R.C. Bailie, W.B. Whiting, J.A. , “Analysis, Synthesis, and Design of Chemical Processes Fourth Edition,” Prentice Hall (2012)



## 第6章 総論

### 6-1 総括

本論文研究では、これまで開発されてきた内部熱交換型蒸留塔(HIDiC)が商業化を果たせなかった原因と考えられる、(1) 適用できるプロセススキームが制約される、(2) メンテナンスが困難な構造、(3) 装置コストが高額、といった欠点を解決するような新しい HIDiC システム・装置を開発することを目的に、新しいアプローチでの研究開発を行った。これまで Secondary Reflux and Vaporization として HIDiC の基本概念が提案されて以来、濃縮部と回収部を並列に設置した際に隣り合う理論段間で熱交換を行うことが想定されてきた。本研究ではこの考えから脱却し、省エネルギーの観点から究極的な蒸留操作のかたちである、可逆蒸留操作の組成とエンタルピー関係に類似した塔内挙動を得られるような熱交換方法を開発し、更にそのようなシステムに関する概念設計手法を開発した。

まず2章では、HIDiC の濃縮部と回収部における単一段間のサイド熱交換が省エネルギー性能に与える影響に注目した。ベンゼン-トルエンの2成分系で低純度製品を得る分離を行う段数一定の分離系を対象に、単一段間のサイド熱交換で得られた結果をもとに限られた段間でサイド熱交換を行うと、全段にわたって位置的に隣り合う段間で内部熱交換を行う場合よりも、高い省エネルギー性が得られる可能性があることを示した。このような限られたサイド熱交換の組合せは、位置が隣り合う段間ではない配置として得られた。更に、この結果が数理最適化法を用いて得られる最適結果とほぼ一致することを示した。

3章では、2章における結果に対する、理論的背景に関する研究を行った。省エネルギー性能の観点から理想的な蒸留操作は可逆蒸留操作であるから、このときの塔内組成とエンタルピー挙動に類似した操作を行うことを目標とした。塔内エンタルピー状態を正確に把握する必要があるため、Ponchon-Savarit 法の  $H$ - $xy$  線図を大幅に改良し、可逆蒸留操作における組成と塔内エンタルピーの関係を示す可逆蒸留線を与え、これを参照しながら、実際の塔内の挙動を表す操作軌跡線を与えるような設計手法を考案した。更に、この  $H$ - $xy$  線図に  $T$ - $xy$  線図を統合し、サイド熱交換を行う組成(段)、その熱交換量および熱交換を行う段の組合せを決定する際に、サイド熱交換器の温度差や伝熱面積を同時に確認しながら設計を行なえるようにした。このように提案した線図と設計手法を用いて、2章の検討対象系を設計し、得られる結果が数理最適化により得られる結果とほぼ一致することを確認した。更に、提案する設計手法を同じベンゼン-トルエン2成分系で高純度製品を得る分離を行う系にも適用し、サイド熱交換器数をパラメータとして提案する設計を行なうことで、最適なサ

イド熱交換器数を容易に得ることが可能なことを示した。更に、提案する手法を 9 成分からなる系にも適用し、2 成分系と同様に設計できることを示した。このような設計手法は、概念設計の初期段階では極めて有用である。

前章までに新たな HIDiC システムの形と、その設計手法を開発することができた。そこで、このような HIDiC がどのような系に効果的に適用できるかを 4 章で考察した。HIDiC はヒートポンプ効果を利用したシステムであるから、相対揮発度の差と圧縮機に供給するガスの圧力変化に対する飽和温度変化が重要な因子となることは、既に SRV 蒸留法が提案された段階で指摘されている。本研究ではこれに加えて、HIDiC がサイド熱交換を行うため、塔内エンタルピー変化に影響を及ぼす因子が、HIDiC の適用適性にも影響を及ぼす可能性があると考え、原料組成と製品純度（分離条件）の影響について検討した。この結果、原料中の軽質成分が高純度で、留出・缶出ともに製品純度の高い分離スペックが要求される系では、HIDiC による効果的な省エネルギー化を得ることは難しいが、これを除く条件では効果的に省エネルギー化できることが示された。

5 章では、これまでの章で研究された新たなサイド熱交換配置を有する HIDiC を実現する装置構造を提案した。この新型 HIDiC は、サイド熱交換の設置段、それぞれの熱交換量、および濃縮部と回収部で熱交換する段の組合せを、3 章で提案した設計手法で決定したように与えることができ、そのうえで本節のはじめに記述したこれまで開発されてきた HIDiC の欠点を解決するような構造を有する。そして、商業規模の処理量を想定した蒸留操作を題材に、従来型蒸留塔と新型 HIDiC それぞれの投資コストと運転コストを算定し、経済性評価を行った。その結果、提案する新型 HIDiC は一般的な投資回収基準を満たすことが示され、今後産業界での普及が大いに期待される。

## 6-2 今後の研究課題

本論文研究にて開発した、新型の HIDiC は高い省エネルギー性能を優れた経済性で実現できることを示した。本論文研究では、問題を可能な限り単純化するため、HIDiC における理論段数の設定を従来型蒸留の最適段数と同一段とすることを前提に検討を行った。すなわち、最小還流比の状態に対して 1.1~1.2 倍の還流比に相当する理論段数である。本論文で提案した可逆蒸留線と操作軌跡線を付加した  $H$ - $xy$  線図から分かるように、従来型蒸留塔と HIDiC では同一の理論段を想定した場合、HIDiC ではサイド熱交換量とリボイラー負荷の合計が、従来型蒸留塔のリボイラー負荷よりも大きくなる。合計熱交換量が多ければ、回収部上部から圧縮機に供給されるガス流量が、従来型蒸留塔の濃縮部に供給されるガス流量よりも大きくなる。HIDiC で高い省エネルギー性を得ることができる理由のひとつは、塔頂ガス再圧縮型ヒートポンプなどに比べて、圧縮機における圧縮比を小

さくできることである。しかし、Eq.(3.18)で表されるように、圧縮機における必要軸動力は圧縮比のみならず、処理するガス流量に大きく影響を受ける。処理する流量が増加する分、圧縮比を低減することで得られる省エネルギー性の一部を犠牲にしていることとなる。また、圧縮機のコストも一般に入口流量（正確には、入口体積流量）が支配要因のひとつであり、入口ガス流量が小さくなれば圧縮比コストを低減することが可能である。圧縮機コストは投資コスト総額に占める割合が大きいいため、ガス流量を低減させることでメリットが得られる可能性が高い。

このように用役費と投資コストの両面から、圧縮機のガス流量を低減すれば、HIDiC の理論段数は本研究の前提とした従来型蒸留塔の最適理論段数と同数とするよりも、段数を多くすることで最適な設計となる可能性が高い。この点に関しては、今後の研究により最適設計条件を特定できるようにすべきである。

また、これまでに開発されてきた同心円型の HIDiC と異なり、サイド熱交換量を操作変数とできるため、非定常運転における挙動確認や制御系に関する研究が必要となる。これらの課題については、既に動解析シミュレーターを用いて検証を開始しているところである。

## 本論文に関する筆者の研究成果

### 発表論文

#### 第2章

若林敏祐, 長谷部伸治, 内部熱交換型蒸留塔(HIDiC)における内部熱交換量分布の省エネルギー性能に与える影響, 化学工学論文集, **37**, 499-505 (2011)

#### 第3章

Wakabayashi, T., & S. Hasebe, “Design of heat integrated distillation column by using  $H$ -xy and  $T$ -xy diagrams,” *Computers and Chemical Engineering*, **56**, 174-183 (2013)

#### 第4章

若林敏祐, 長谷部伸治, 可逆蒸留線と操作軌跡線を用いた内部熱交換型蒸留塔(HIDiC)の適性判断, 化学工学論文集, 受理通知受領済み

### 国際会議における口頭発表

Wakabayashi, T., & S. Hasebe, “A Novel Concept for Heat Integrated Distillation Column as An Outcome of De-tuning of Reversible Distillation System,” AIChE Annual Meeting, paper **215e**, Salt Lake City, United State of America (2010)

Wakabayashi, T., “Energy Saving by Innovative Distillation System *SUPERHIDIC*,” The 5<sup>th</sup> Japan-China -Korea Petroleum Technology Congress, **3-10**, Dalian, China (2012)

### 特許登録・出願

特許登録第 4803470 号「熱交換型蒸留装置」(2009) (米国登録第 8440056 号(2010), 欧州公開番号 2486965 号 (審査中), 韓国登録 10-1235388 号(2010)), 中岩勝, 若林敏祐, 玉越昭彦

特許出願第 2012-33978 号「熱交換型蒸留装置」(2012) (米国出願第 13/771741 号 (2013), 欧州出願第 13.154577.4 号 (2013), 韓国出願第 10-2013-0017065 号 (2013)), 若林敏祐, 中尾公人

特許出願第 2012-38988 号「熱交換型蒸留装置」(2012) (米国出願第 13/775029 号 (2013), 欧州出願第 13.154580.8 号 (2013), 韓国出願第 10-2013-0018793 号 (2013)), 若林敏祐, 中尾公人

特許出願第 2012-080525 号「熱交換型蒸留装置」(2012) (米国出願第 13/788423 号 (2013), 欧州出願第 13.159728.8 号 (2013), 韓国出願第 10-2013-0033499 号 (2013)), 若林敏祐, 中尾公人

## 謝辞

本論文をまとめるにあたり，広範な観点から懇切な御指導を賜りました京都大学化学工学専攻プロセスシステム工学研究室長谷部伸治教授に厚く御礼申し上げます．

また，有益な御助言を多数頂きました，京都大学工学研究科化学工学専攻田門肇教授，京都大学工学研究科化学工学専攻大嶋正裕教授に御礼申し上げます．

本研究開発の一部は，独立行政法人産業技術総合研究所と東洋エンジニアリング株式会社の共同研究の成果が含まれており，共同研究において全面的な技術支援と御指導を頂きました，独立行政法人産業技術総合研究所 環境・エネルギー分野副研究統括 中岩勝博士に御礼申し上げます．

東洋エンジニアリング株式会社にて，本研究開発に関わる技術的な御指導と開発の御支援を頂きました，濱村光利氏，石井啓介氏に御礼申し上げます．また，現在，新型内部熱交換型蒸留塔システムの商業化プロジェクトを共に推進している中尾公人氏，立川公一氏に感謝致します．

最後に博士課程での研究期間中，精神的に支えてくれた家族に感謝の気持ちを表します．